

**ERZEUGUNG VON VAKUUMULTRAVIOLETT- UND
XUV-STRAHLUNG DURCH FREQUENZKONVERSION
VON JODLASERLICHT**

Dissertation

**der
Fakultät für Physik der
Ludwig-Maximilians-Universität
München**

**vorgelegt von
Josef Wildenauer
aus München**

München, den 28. April 1986

**ERZEUGUNG VON VAKUUMULTRAVIOLETT- UND
XUV-STRAHLUNG DURCH FREQUENZKONVERSION
VON JODLASERLICHT**

Dissertation

**der
Fakultät für Physik der
Ludwig-Maximilians-Universität
München**

**vorgelegt von
Josef Wildenauer
aus München**

München, den 28. April 1986

1. Gutachter : Prof. Dr. Herbert Walther

2. Gutachter : Prof. Dr. Heinz Schrötter

Tag der mündlichen Prüfung: 27. Juni 1986

Kurzfassung

Gegenwärtig stellt die optische Frequenzkonversion die wichtigste Lichtquelle dar, die zeitlich und örtlich kohärente Strahlung im Vakuumultraviolett- ($200 \text{ nm} > \lambda > 100 \text{ nm}$) und XUV-Bereich ($100 \text{ nm} > \lambda > 10 \text{ nm}$) des Spektrums erzeugt.

Deshalb wurde der Versuch unternommen, kurzwellige Strahlung mit Hilfe der Harmonischenerzeugung von Jodlaserlicht zu erhalten. Auf diese Weise konnte durch Bildung von Oberwellen in Edelgasen der Spektralbereich jenseits der Absorptionsgrenze nichtlinearer Kristalle beachtlich erweitert werden. Dabei wurde Jodlaserlicht ($\lambda = 1315,2 \text{ nm}$) in Xenongas direkt in die neunte Harmonische bei $146,1 \text{ nm}$ konvertiert. Ferner gelang es zum ersten Mal, die elfte Harmonische bei $119,6 \text{ nm}$ in Xenon zu erzeugen.

- Die direkte Erzeugung der elften Harmonischen aus dem Infraroten ist -soweit bekannt- der höchste bisher erreichte nichtlineare Prozeß, der sowohl kohärente als auch rein monochromatische Strahlung lieferte. -

Da die Ordnung der nichtlinearen Wechselwirkung bei diesen Prozessen verhältnismäßig hoch war, fiel der Konversionswirkungsgrad mit $4 \cdot 10^{-11}$ bei 9ω bzw. $6 \cdot 10^{-12}$ bei 11ω der Erwartung gemäß niedrig aus. Die erzeugten VUV-Leistungen lagen bei einer Eingangsleistung von 100 MW in beiden Fällen nur noch im mWatt-Bereich.

In weiteren Versuchsreihen wurden aus der unter Verwendung von Kristallen gewonnenen dritten Harmonischen (438 nm) von Jodlaserlicht mittels nichtlinearer Wechselwirkung in Xenon und Argon durch Verdreifachung die neunte Harmonische

bei 146,1 nm mit einem Umwandlungsgrad von $2 \cdot 10^{-5}$ bzw. $9 \cdot 10^{-8}$ und in Argon, Neon und Helium durch Verfünffachung die fünfzehnte Harmonische bei 87,7 nm mit einem Konversionswirkungsgrad von $8 \cdot 10^{-9}$, $4 \cdot 10^{-12}$ und $7 \cdot 10^{-14}$ erreicht. Bei 60 MW Eingangsleistung betrug die maximal erzielte VUV-Leistung für 9ω etwa 1 kW und für 15ω ca. 1 Watt.

Die Abhängigkeit des Konversionswirkungsgrads vom Druck des Mediums und von der Energie des Pumpulses wurde experimentell überprüft und mit den theoretischen Vorhersagen verglichen. Dabei ist festgestellt worden, daß sowohl bei der Energie- als auch bei der Druckabhängigkeit Sättigungseffekte auftreten, die zunächst durch die Theorie nicht erklärt werden. Erst nach Berücksichtigung der Intensitätsabhängigkeit des Brechungsindex (optischer oder quadratischer Kerreffekt) ergibt sich eine zufriedenstellende Übereinstimmung mit den Meßpunkten.

Aus den experimentell gewonnenen Daten wurden die Werte für die nichtlinearen Suszeptibilitäten ermittelt. Bei 438 nm Pumpstrahlung ergab sich für die Suszeptibilität dritter Ordnung $\chi^{(3)}$ ($-9\omega; 3\omega, 3\omega, 3\omega$) ein Wert von $2,6 \cdot 10^{-34}$ esu pro Atom und bei $1,3 \mu\text{m}$ Pumpstrahlung für die Suszeptibilität neunter Ordnung $\chi^{(9)}$ ($-9\omega; \omega, \dots, \omega$) ein Wert von $2,5 \cdot 10^{-63}$ esu pro Atom.

Derart kurzwellige Strahlungsquellen lassen sich erfolgversprechend in der Fusionsforschung anwenden.

Inhaltsverzeichnis

	Seite
<u>Kurzfassung</u>	
1. <u>Zielsetzung und Einführung</u>	1
2. <u>Theorie der Frequenzvervielfachung</u>	6
2.1 Grundgleichungen der nichtlinearen Optik	7
2.2 Bedeutung der nichtlinearen Suszeptibilität	12
2.3 Lösung der nichtlinearen Wellengleichung für isotrope Medien	15
2.3.1 bei ebenen Wellen	17
2.3.2 bei fokussierten Strahlen	18
2.4 Einfluß von Konkurrenzprozessen	23
3. <u>Versuchsanordnung</u>	25
3.1 Überblick	25
3.2 Pumpstrahlung	26
3.2.1 Oszillator-Verstärker-System bei 1,3 μm	26
3.2.2 Fundamentalstrahlung bei 438 nm durch Frequenzkonversion in Kristallen	29
3.3 Spektrometer	31
3.4 Gaszelle	31
3.5 Gasdüse	33
3.6 Detektorsysteme	37

	Seite
4. <u>Experimentelle Ergebnisse</u>	44
4.1 Übersicht	44
4.2 Neunte Harmonische ($3 \times 3\omega \rightarrow 9\omega$, $\lambda = 146 \text{ nm}$)	45
4.3 Fünfzehnte Harmonische ($5 \times 3\omega \rightarrow 15\omega$, $\lambda = 88 \text{ nm}$)	54
4.4 Direkt erzeugte neunte und elfte Harmonische aus Jodlaserlicht ($9 \times 1\omega \rightarrow 9\omega$, $\lambda = 146 \text{ nm}$; $11 \times 1\omega \rightarrow 11\omega$, $\lambda = 120 \text{ nm}$)	66
4.5 Diskussion der Ergebnisse	70
5. <u>Zusammenfassung und Ausblick</u>	85
6. <u>Anhang</u>	90
7. <u>Literaturverzeichnis</u>	97

1. Zielsetzung und Einführung

Das Verstehen der Vorgänge im VUV- ($200 \text{ nm} > \lambda > 100 \text{ nm}$) und XUV-Bereich ($100 > \lambda > 10 \text{ nm}$) des elektromagnetischen Spektrums ist von großer Bedeutung für die Klärung vielfältiger Phänomene in der Physik, Chemie und Biologie. Das Ziel der vorliegenden Arbeit besteht darin, mit Hilfe von Laserlicht in den oben beschriebenen Wellenlängenbereich (VUV und XUV) vorzudringen und dadurch unsere Kenntnisse über kurzwellige Strahlung erweitern zu helfen. Ein Mittel hierzu ist die Frequenzkonversion von Hochleistungslaserstrahlung in nichtlinearen Medien.

Die meisten Laser senden Infrarotlicht oder Strahlung im sichtbaren oder ultravioletten Bereich des elektromagnetischen Spektrums aus. Stimuliert durch die vielfältigen Anwendungsmöglichkeiten des Lasers unternahm man große Anstrengungen, die bestehenden Lasertypen zu verbessern. Auch wurde versucht, durch Neuentwicklung von Lasern deren Frequenzbereich zu erweitern.

Bei der Suche, den Wellenlängenbereich zu vergrößern, erwies sich die nichtlineare Optik als eine brauchbare Möglichkeit, schmalbandige kohärente Strahlung in Wellenlängenbereichen, in denen noch keine Primärlaser existieren, zu erzeugen.

Als Folge der hohen Intensitäten des Laserlichts treten bei Wechselwirkung mit Materie eine Reihe nichtlinearer

Effekte auf. Nichtlinearitäten sind auch aus anderen Gebieten der Physik, zum Beispiel der Akustik oder Elektrotechnik, bekannt. Derartige Effekte wurden mit Lasern erstmals von Frank und Mitarbeitern /1/ nachgewiesen, als sie die zweite Harmonische von einem Rubinlaser mit einem Quarzkristall erzeugten.

Mit Erfolg wurden Kristalle verschiedener Art bis etwa $\lambda = 200 \text{ nm}$ eingesetzt /2/. Bei noch kürzeren Wellenlängen ist diese Methode wegen Absorption der Kristalle nicht mehr anwendbar. Für die Frequenzkonversion kommen dann nur noch isotrope Medien in Frage.

Hierbei bieten sich zwei verschiedene Methoden an, nämlich Frequenzvervielfachung und stimulierte Antistokes-Raman-Streuung (SARS). Durch Erzeugung der 13. Antistokes-Welle von ArF-Laserstrahlung ($\lambda = 193 \text{ nm}$) wurde mit SARS in Wasserstoff kohärentes Licht bei 130 nm gewonnen /3/. Kurzweilig dürfte dies jedoch die Grenze dieser Methode sein, da bei ca. 120 nm der Wasserstoff - das Medium mit der größten Ramanverschiebung - zu absorbieren beginnt. Im Gegensatz dazu kann man durch Frequenzvervielfachung noch wesentlich weiter in das Gebiet kurzer Wellenlängen vordringen und zwar deswegen, weil zum einen die Frequenztransformation in größeren Sprüngen erfolgt und zum anderen die atomaren Gase, die als nichtlineares Medium benutzt werden, erst bei kürzeren Wellenlängen absorbieren.

New u.a. /4, 5/ sowie Rado /6/ berichteten als erste über die Harmonischenerzeugung in Gasen. Später zeigten Harris und Mitarbeiter /7, 8, 9/, daß sich der Wirkungsgrad um Größenordnungen anheben läßt, wenn man Gasgemische verwendet. Einen weiteren bedeutenden Fortschritt erzielten Bloom u.a. /10/, Hodgson u.a. /11/ und Leung u.a. /12/, als sie nachwiesen, daß der Konversionsgrad bei Ausnützung der Zwei-Photonen-Resonanzen weiter ansteigt.

Anfangs wurden vor allem leistungsstarke Neodym-Laser eingesetzt. In der Zwischenzeit erreichte man auch mit Farbstofflasern /13, 14/ sowie Dauerstrich-Lasersystemen /15/ beachtliche VUV-Leistungen. Die kürzesten, mit Methoden der nichtlinearen Optik erzeugten Wellenlängen liegen gegenwärtig bei 38 nm und 35,5 nm /16/ ⁺.

Ausführliche Darstellungen der Phänomene nichtlinearer Optik finden sich in Butcher /18/, Bloembergen /19/, Hanna u.a. /20/, Jamorz und Stoicheff /21/, Reintjes /22/, C.R. Vidal /23/ oder Shen /24/.

⁺ Von kohärenter Strahlung noch kürzerer Wellenlängen ($\lambda = 20,6$ und $20,9$ nm) berichtete zu Beginn 1985 eine Forschergruppe um D. Mathews am Lawrence Livermore Laboratory. Diese Strahlung wurde jedoch nicht durch Frequenzumwandlung erzeugt, sondern von einem hoch-ionisierten Selen-Plasma ausgesandt /17/.

Die vorliegende Arbeit befaßt sich mit Experimenten zur Frequenzkonversion von Jodlaserpulsen ($\lambda = 1,3152 \mu\text{m}$) ins VUV und XUV. Bisher wurde die zweite, dritte, vierte, fünfte und sechste Harmonische - also eine Reihe von Wellenlängen - im Sichtbaren und nahen Ultraviolett durch nicht-lineare Wechselwirkung erzeugt /35,36/. Durch Frequenzvervielfachung in Edelgasen gelang es, auch die neunte, elfte und fünfzehnte Harmonische von Jodlasersicht bei $\lambda = 146,1 \text{ nm}$, $\lambda = 119,6 \text{ nm}$ und $\lambda = 87,7 \text{ nm}$ zu erzeugen.

Hierzu wurden zwei Arten von Experimenten durchgeführt:

1. bildete die dritte Harmonische des Jodlasers ($\lambda = 438 \text{ nm}$) die Pumpstrahlung für die Frequenzkonversion in die neunte und fünfzehnte Harmonische ($3 \times 3\omega \rightarrow 9\omega$ und $5 \times 3\omega \rightarrow 15\omega$),
2. dienten Jodlaserpulse als Pumpstrahlung dazu, die neunte und elfte Harmonische direkt zu erzeugen.

Es folgt nun ein knapper Abriß der Arbeit:

Zunächst wird die Theorie für die Erzeugung Harmonischer in isotropen Medien erläutert, daran schließen sich Betrachtungen über Konkurrenzprozesse an (Kapitel 2).

In Kapitel 3 wird der Versuchsaufbau beschrieben, der unter anderem aus dem Pumplaser, den Kristallen zur Erzeugung der dritten Harmonischen und einem für das Experiment gebauten Spektrometer besteht, in dem die Erzeugung und der Nachweis der konvertierten Strahlung stattfindet.

Kapitel 4 enthält die Ergebnisse der Messungen und untersucht, inwieweit sich diese durch die Theorie verstehen lassen. Gründe möglicher Abweichungen werden diskutiert. Werte für zwei nichtlineare Suszeptibilitäten von Xenon sind aus den Messungen abgeleitet worden.

Das letzte Kapitel faßt die Ergebnisse zusammen und gibt einen Ausblick auf mögliche weitere Experimente sowie Anwendungen.

2. Theorie der Frequenzvervielfachung

In dieser Arbeit soll, wie schon erwähnt, die Erzeugung von VUV- und XUV-Strahlung durch Frequenzkonversion in Kristallen und Gasen behandelt werden. Bevor die Experimente, die zu diesem Zweck durchgeführt wurden, besprochen werden, sollen kurz die theoretischen Grundlagen, auf denen die Ausbreitung elektromagnetischer Wellen beruht, beschrieben werden.

Licht ist bekanntlich eine elektromagnetische Welle, die sich in Materie ausbreitet. Die optischen Eigenschaften von Materie sind durch Reaktionen der Elektronen und Ionen auf das eingestrahlte Licht bestimmt, wobei man in der linearen Optik davon ausgeht, daß die elektromagnetischen Felder im Vergleich zu denen, die die Wechselwirkung zwischen den Atomen vermitteln, klein sind. Pflanzte sich ein Lichtstrahl durch ein Medium fort, reagieren die schweren Atomkerne auf das schnell veränderliche Feld nicht, dagegen ändern die leichten und schwach gebundenen Valenzelektronen ihre Lage unter dem Einfluß des Feldes periodisch. Während das einfallende Licht auf diese Weise ein oszillierendes Dipolmoment in der Elektronenverteilung induziert, strahlt dieses seinerseits ein zweites optisches Feld aus. Gegenüber der Primärstrahlung ist die Sekundärstrahlung in der Phase verzögert. Sind die einfallenden Felder schwach, hängt die induzierte Polarisierung

linear von der Stärke des einwirkenden Feldes ab, und es wird nur Strahlung mit der Frequenz der erregenden Welle abgegeben. Die Überlagerung der Primärwelle mit der Sekundärwelle ergibt eine Welle mit verminderter Phasengeschwindigkeit, was in der Optik phänomenologisch durch den Brechungsindex berücksichtigt wird. Sind jedoch die einwirkenden Felder hinreichend stark, so steigt die induzierte Polarisation nicht mehr proportional der Feldstärke, sondern es treten Glieder höherer Ordnung auf.

Diesen Sachverhalt kann man mathematisch darstellen, indem man die Polarisation $\vec{P}$ nach Potenzen der Feldstärke $\vec{E}$ entwickelt.

$$\vec{P} = \chi^{(1)} \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E}^2 + \chi^{(3)} \vec{E}^3 + \dots \quad (1)$$

Hierbei bezeichnet $\chi^{(m)}$ den Suszeptibilitätstensor m-ter Ordnung vom Rang (m+1).

2.1 Grundgleichungen der nichtlinearen Optik

Nach Maxwell lauten die Grundgleichungen der Elektrodynamik für ein quellenfreies, stromloses Medium:

$$\text{rot } \vec{E} = - \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (2)$$

$$\text{rot } \vec{H} = \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (3)$$

$$\operatorname{div} \vec{D} = 0 \quad (4)$$

$$\operatorname{div} \vec{B} = 0, \quad (5)$$

wobei $\vec{D} = \vec{E} + 4\pi\vec{P}$ die dielektrische Verschiebung,
 $\vec{P}$ die elektrische Polarisierung des Mediums kennzeichnet
 und die magnetische Polarisierung $\vec{M}$ gleich Null gesetzt ist.
 Wenn man Gleichung (3) nach der Zeit t differenziert,
 die Rotation von (2) bildet und beide unter Berücksich-
 tigung der Identität $\operatorname{rot} \operatorname{rot} = \operatorname{grad} \operatorname{div} - \Delta$ ineinander ein-
 setzt, so ergibt sich folgende Wellengleichung

$$\square \vec{E} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2} \quad (6)$$

mit

$$\square = \Delta - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}$$

Zu Beginn wurde bereits erläutert, daß man die Polari-
 sation $\vec{P}$ mathematisch im allgemeinen als Reihe darstellt:

$$\vec{P} = \chi^{(1)} \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E}^2 + \chi^{(3)} \vec{E}^3 + \dots \quad (7)$$

$$= \vec{P}_L + \vec{P}_{NL} \quad (8)$$

Dabei beschreibt

$$\vec{P}_L = \chi^{(1)} \vec{E} \quad \text{den linearen und}$$

$$\vec{P}_{NL} = \chi^{(2)} \vec{E}^2 + \chi^{(3)} \vec{E}^3 + \dots \quad \text{den nichtlinearen}$$

Teil der Polarisierung.

Sind die Feldstärken genügend klein ($E < 10^8$ V/m, Licht geringer Intensität), ist der nichtlineare Anteil vernachlässigbar. Nach dem Einsetzen des linearen Restterms in die allgemeine Wellengleichung folgt hieraus die grundlegende Wellengleichung der linearen Optik.

$$\Delta \vec{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \cdot \frac{\partial^2 (\chi^{(1)} \vec{E})}{\partial t^2} \quad (9)$$

Mit $1+4\pi\text{Re } \chi^{(1)} = n^2$ nimmt die Gleichung schließlich die Form

$$\Delta \vec{E} - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = 0 \quad (10)$$

an. Die lineare Polarisierung bewirkt nur eine Verringerung der Phasengeschwindigkeit um den Faktor $1/n$, in dem n der Brechungsindex ist.

Bei hohen Feldstärken, wie sie im Falle von Laserlicht auftreten, muß der nichtlineare Term $\vec{P}_{NL}$ berücksichtigt werden. Aus der allgemeinen Wellengleichung (6) ergibt sich auf diese Weise die Wellengleichung der nichtlinearen Optik.

$$\Delta \vec{E} - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}}{\partial t^2} \quad (11)$$

Die nichtlineare Polarisierung führt auf einen Quellterm in der Wellengleichung, welcher die Erzeugung und Verstärkung neuer Wellen in dem nichtlinearen Medium beschreibt. Laser liefern Strahlung wohldefinierter Frequenzen. Diese Strahlung kann man mathematisch durch den Ansatz

$$\vec{E}(\vec{r}, z, t) = \sum_i \frac{1}{2} [\vec{\epsilon}_{\omega_i}(\vec{r}, z) e^{-i(\omega_i t - k_i z)} + \text{kk.}] \quad (12)$$

darstellen. Desgleichen läßt sich die Polarisierung wie folgt beschreiben:

$$\vec{P}_{NL}(\vec{r}, z, t) = \sum_j \frac{1}{2} [\vec{\mathcal{P}}_{\omega_j}(\vec{r}, z) \exp -i(\omega_j t - k_j^p z) + \text{kk.}] \quad (13)$$

Die Summe berücksichtigt dabei, daß es sich im allgemeinen um Licht mehrerer Wellen handelt.

Bei Laserpulsen, die sich über eine große Anzahl von optischen Zyklen erstrecken, kann die zweite Ableitung in der Wellengleichung hinsichtlich der Ausbreitungsrichtung z und der Zeit t durch sogenannte Approximation der langsamen Einhüllenden eliminiert werden. Mathematisch wird diese Näherung durch die Beziehungen

$$\begin{aligned} \partial \epsilon_{\omega_i} / \partial z \ll k_i \epsilon_{\omega_i} \quad \text{und} \quad \partial \epsilon_{\omega_i} / \partial t \ll \omega_i \epsilon_{\omega_i} \\ \partial \mathcal{P}_{\omega_j} / \partial z \ll k_j^p \mathcal{P}_{\omega_j} \quad \text{und} \quad \partial \mathcal{P}_{\omega_j} / \partial t \ll \omega_j \mathcal{P}_{\omega_j} \end{aligned} \quad (14)$$

ausgedrückt, d.h. daß sich die Einhüllende über eine optische Oszillation nur sehr wenig ändert.

Wird die Beziehung (12) in die Gleichung (6) eingesetzt und dazu Formel (14) berücksichtigt, so folgt daraus die Grundgleichung für die Ausbreitung von Wellen in nicht-linearen Medien.

$$\Delta_{\perp} \epsilon_{\omega_i} + 2ik_i \frac{d\epsilon_{\omega_i}}{dz} = - \frac{4\pi k_i^2}{n_i^2} \mathcal{P}_{\omega_i} e^{-i\Delta k z}, \quad (15)$$

wobei

$$\Delta_{\perp} = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2},$$

$$\frac{d}{dz} = \frac{\partial}{\partial z} + \frac{n_i}{c} \frac{\partial}{\partial t} \quad \text{und} \quad \Delta k = k_j^p - k_i$$

ist. Bei ebenen Wellen ($\Delta_{\perp}=0$) entfällt der erste Term in obiger Gleichung.

Die Wellenvektordifferenz Δk entsteht dadurch, daß sich die Polarisierung im allgemeinen nicht mit der gleichen Phasengeschwindigkeit wie die erzeugte harmonische Welle ausbreitet.

2.2 Bedeutung der nichtlinearen Suszeptibilität

Die rechte Seite von Gleichung (15) enthält über das $\mathcal{P}_{\omega_i}$ im Pumpimpuls alle nichtlinearen Effekte, z.B. Zweiphotonenabsorption, stimulierte Ramanstreuung, Selbstfokussierung usw. Meist beschränkt man sich in der Theorie auf einen dominierenden nichtlinearen Effekt und vernachlässigt die anderen nichtlinearen Wirkungen. Es ist bekannt, daß - wenn Harmonische erzeugt werden - bei hohen Intensitäten andere nichtlineare Effekte auftreten, die das experimentelle Ergebnis in gewisser Weise beeinträchtigen können.

Reelle Suszeptibilitäten, die eine nichtlineare Polarisations

$$\vec{P}_{NL} = \chi^{(2)} \vec{E}^2 + \chi^{(3)} \vec{E}^3 + \dots + \chi^{(m)} \vec{E}^m \quad (16)$$

ergeben, beschreiben die Erzeugung von Harmonischen. Es ist leicht einsehbar, daß der erste Term obiger Gleichung eine Frequenzverdopplung, der zweite eine Verdreifachung usw. erzeugt. Im allgemeinen sind Suszeptibilitäten Tensoren, d.h. die Richtung des Polarisationsvektors stimmt zumeist nicht mit der Richtung des Feldes überein. Hier wird von der Tensoreigenschaft (die gewisse Auswirkungen auf die Polarisierung der erzeugten Strahlung hat) abgesehen. Ferner sollen nur isotrope Medien mit

Inversionssymmetrie (z.B. monoatomare Gase) betrachtet werden.⁺)

In einem solchen Medium verschwinden, wie sich zeigen läßt, aus Symmetriegründen alle $\chi^{(m)}$ mit geradzahligem Index. Daher lassen sich nur Harmonische ungerader Ordnung erzeugen.

Die $\chi^{(m)}$ werden meistens als phänomenologische Größen betrachtet. Doch lassen sie sich mit Hilfe der Störungstheorie auch quantenmechanisch berechnen. Da dabei über sämtliche Energieniveaus des Systems summiert wird, ergeben sich recht komplizierte Ausdrücke. So stellt sich z.B. die Suszeptibilität dritter Ordnung zur Erzeugung der dritten Harmonischen (entartete Vierwellenmischung) dar:

$$\chi^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega) = \frac{1}{\hbar^3} \sum_{gabc} \rho(g) \cdot \quad (17)$$

$$\left[\frac{\mu_{ga} \mu_{ab} \mu_{bc} \mu_{cg}}{(\Omega_{ag} - 3\omega)(\Omega_{bg} - 2\omega)(\Omega_{cg} - \omega)} + \frac{\mu_{ga} \mu_{ab} \mu_{bc} \mu_{cg}}{(\Omega_{ag} + \omega)(\Omega_{bg} - 2\omega)(\Omega_{cg} - \omega)} \right.$$

$$\left. + \frac{\mu_{ga} \mu_{ab} \mu_{bc} \mu_{cb}}{(\Omega_{ag} + \omega)(\Omega_{bg} + 2\omega)(\Omega_{cg} - \omega)} + \frac{\mu_{ga} \mu_{ab} \mu_{bc} \mu_{cg}}{(\Omega_{ag} + \omega)(\Omega_{bg} + 2\omega)(\Omega_{cg} + 3\omega)} \right]$$

Der Index g steht für das Grundniveau, die Indizes a, b, c symbolisieren verschiedene höhere Energieniveaus;

⁺) In gewissen Kristallen tritt $\chi^{(2)}E^2$ als dominierende Nichtlinearität auf, was zur Frequenzverdopplung verwendet wird. Dieser Effekt wird in der vorliegenden Arbeit zwar eingesetzt, stellt aber nicht das eigentliche Thema der Untersuchung dar.

μ_{ij} ist das Matrixelement des Übergangs zwischen dem Niveau i und dem Niveau j . Im Zähler treten die Produkte der Matrixelemente, im Nenner dagegen Differenz- und Summenterme der atomaren Übergangsfrequenzen der Laserfrequenz und ihrer Harmonischen auf. Die Terme, die nur Frequenzsummen enthalten, spielen meist keine Rolle, hingegen können Frequenzdifferenzen in der Nähe einer Resonanz sehr klein werden und zu einer starken Erhöhung der nichtlinearen Suszeptibilität führen. Zur Veranschaulichung der Formel (17) sei die Situation an einem Term der Summe in Abbildung 1 erläutert.

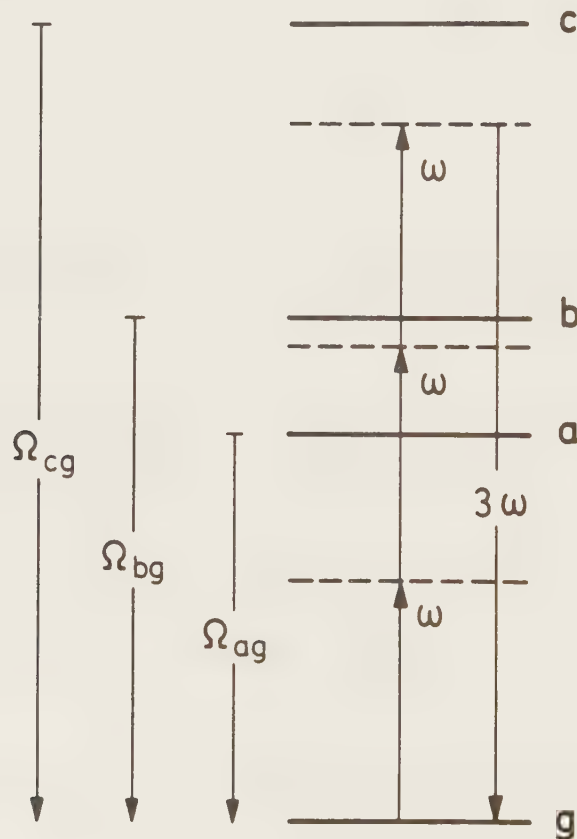


Abb.1:
Beispiel für die Berechnung eines $\chi^{(3)}$ nach Gl.(17);
Zwei - Photonenresonanz mit Niveau b .

Bei der fünften Harmonischen tritt eine Formel ähnlich der zu (17) auf, wobei jedoch jedes Glied der Summe sechs Terme enthält /27/. Aus der Form der nichtlinearen Suszeptibilität folgt, daß sich durch geeignete Wahl des Mediums bestimmte nichtlineare Wirkungen sehr stark erhöhen können. Von besonderem Interesse sind hierbei Resonanzen, die die Grundwelle nicht absorbieren, also z.B. Zweiphotonenresonanz bei 3ω oder Vierphotonenresonanz bei 5ω .

Im experimentellen Teil dieser Arbeit werden keine sehr scharfen Resonanzen verwendet, jedoch wird sich zeigen, daß auch relativ schwache Resonanzen noch zu einer erhöhten Ausbeute führen.

2.3 Lösungen der nichtlinearen Wellengleichungen für isotrope Medien

Im folgenden soll die Lösung der nichtlinearen Wellengleichung für die dritte Harmonische erläutert werden. Anschließend wird die Formel für die m-te Harmonische ohne Ableitung wiedergegeben. Die $\chi^{(m)}$ werden dabei als phänomenologische, materialspezifische, skalare Größen betrachtet.

Zunächst muß die nichtlineare Polarisations-Amplitude $\mathcal{P}_{3\omega}$ auf der rechten Seite der Gleichung (15) berechnet werden. Im folgenden beziehen sich die Indizes 1 und 3

auf die Fundamentalwelle (Pumpstrahlung) und die dritte Harmonische. Für die Pumpwelle gilt (s. Gl. 12)

$$\vec{E}_1(\vec{r}, z, t) = \frac{1}{2} [\xi_1 e^{-i(\omega_1 t - k_1 z)} + \xi_1^* e^{i(\omega_1 t - k_1 z)}] \quad (18)$$

Aus dem Ansatz für die erzeugte Polarisation dritter Ordnung

$$\vec{P}_3(\vec{r}, z, t) = \frac{1}{2} [\mathcal{P}_3 e^{-i(\omega_3 t - k_3^P z)} + \mathcal{P}_3^* e^{i(\omega_3 t - k_3^P z)}] \quad (19)$$

und
$$\vec{P}_3 = \chi^{(3)} \vec{E}_1^3 \quad (20)$$

ergibt sich für $\mathcal{P}_3$

$$\mathcal{P}_3 = \frac{1}{4} \chi^{(3)} \xi_1^3 \quad (21)$$

mit $k_3^P = 3 k_1$.

Die Formel für die dritte Harmonische, abgeleitet aus der nichtlinearen Wellengleichung, zeigt somit nachstehende Form:

$$\Delta_1 \xi_3 + 2ik_3 \frac{d\xi_3}{dz} = - \frac{\pi k_3^2}{n_3^2} \chi^{(3)} \xi_1^3 e^{-i\Delta k z} \quad (22)$$

Die Amplitude der Pumpwelle ξ_1 kann in dieser Gleichung als Konstante betrachtet werden, weil im Experiment die Konversion in die dritte Harmonische so klein ist, daß eine Entleerung der Pumpwelle nicht eintritt.

Für die zwei experimentell gut definierten Fälle:
 "Ebene Welle" und "fokussierter Gauß'scher Strahl"
 wird die Lösung von Gleichung (22) gegeben.

2.3.1 Ebene Wellen

In diesem Fall ist $\Delta_1 \xi_3 = 0$, woraus

$$\frac{d\xi_3}{dz} = i \frac{\pi^2}{n_3 \lambda_3} \chi^{(3)} \xi_1^3 e^{-i\Delta k z} \quad (23)$$

folgt.

Für ein Medium der Länge L ergibt sich die Lösung

$$\xi_3(z) = i \frac{\pi^2}{n_3 \lambda_3} \chi^{(3)} \xi_1^3 \left(\frac{1 - e^{-i\Delta k L}}{i\Delta k} \right) \quad (24)$$

und für die Intensität

$$I_3 = \frac{cn_3}{8\pi} |\xi_3|^2 = \frac{576 \pi^6}{n_1^3 n_3 \lambda_1^2 c^2} |\chi^{(3)}|^2 I_1^3 L^2 \frac{\sin^2(\Delta k L/2)}{(\Delta k L/2)^2} \quad (25)$$

Aus Gleichung (25) ist ersichtlich, daß die Intensität der dritten Harmonischen mit der dritten Potenz der Pumpintensität ansteigt. Über $|\chi^{(3)}|^2$ und L^2 zeigt sich eine quadratische Abhängigkeit vom Druck und von der Länge des Mediums, wobei jedoch zu beachten ist, daß im letzten Term die Länge und über Δk der Druck enthalten ist.

Die letzte Gleichung $\frac{\sin^2(\Delta k L/2)}{(\Delta k L/2)^2}$ berücksichtigt die unterschiedlichen Phasengeschwindigkeiten der erzeugten Polarisation bei 3ω und der dritten Harmonischen, die aus der Dispersion des Mediums ($n_{3\omega} \neq n_{\omega}$) entstehen. In einem dispersionsfreien Medium ($n_{3\omega} = n_{\omega}$) ist $\Delta k = 0$. Der Phasenanpassungsterm erreicht den Maximalwert 1. Ferner ergäbe sich in einem solchen Medium optimale Konversion, wobei die erzeugte dritte Harmonische proportional zum Quadrat von Druck und Länge wüchse. Ähnlich wie bei der dritten Harmonischen kann auch die Lösung für die m-te Harmonische berechnet werden.

Nachstehende Formel bestimmt die Intensität I_m

$$I_m = \frac{(2\pi)^{m+3}}{n_m n_1} \frac{m^2}{\lambda_1^2 c^{m-1}} |X^{(m)}|^2 L^2 \frac{\sin^2(\Delta k L/2)}{(\Delta k L/2)^2} I_1^m \quad (26)$$

$$m = 3, 5, 7, \dots$$

nach der die m-te Harmonische proportional zur m-ten Potenz der Pumpintensität wird.

2.3.2 Fokussierte Strahlen

Um höhere Intensitäten zu erreichen, arbeitet man bei den Experimenten häufig mit fokussierten Strahlen. In diesem Fall ist in Gleichung (15) der erste Term zu berücksichtigen. Bei fokussierten Strahlen beliebiger Intensitätsverteilung über den Querschnitt läßt sich die Wellen-

gleichung nur noch numerisch lösen (s. z.B. Yiu u.a. /28, 29/). Dagegen liegt für Gauß'sche Strahlen nullter Ordnung (TEM_{00}) eine analytische Lösung vor.

Im folgenden soll der Verlauf vorgenannter Rechnung kurz angedeutet und das Ergebnis diskutiert werden.

Zur Beschreibung des einfallenden, ein Gauß'sches TEM_{00} -Profil tragenden Strahls sei nachstehende, in Abb. 2 näher verdeutlichte Notation benutzt. Hierbei erstrecke sich das nichtlineare Medium von $\xi' = \xi$ bis $\xi' = \zeta$.

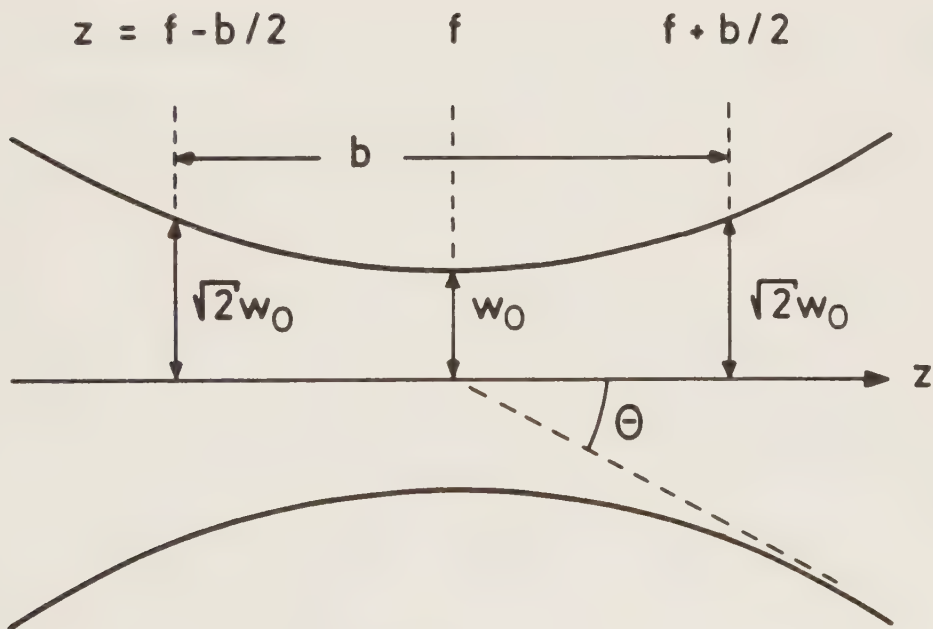


Abb. 2:
Fokussierter Gauß'scher Strahl (Notation)

b bezeichne den konfokalen Parameter, für den die folgenden Beziehungen gelten:

$$b = \frac{2\pi w_0^2}{\lambda} = \frac{2\pi w_0^2 n}{\lambda_0} = \frac{2 w_0}{\theta} = k w_0^2 \quad (27)$$

w_0 sei der Radius der Strahltaille,

θ der halbe Beugungswinkel des Fernfeldes,

n der Brechungsindex,

k der Wellenvektor,

$\xi = 2 (z-f)/b$ die Koordinate einer normierten Skala
mit dem Nullpunkt bei $z=f$,

$\zeta = 2 f/b$ und

f gebe den Ort des Fokus bzw. der Strahltaille an.

Kennzeichnet k_1 den Wellenvektor der Ausgangsstrahlung und ξ_{10} die elektrische Feldamplitude im nichtlinearen Medium, so lautet die Gleichung für das ursprüngliche Feld

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} [\xi_1(\vec{r}) e^{-i\omega_1 t} + \xi_1^*(\vec{r}) e^{i\omega_1 t}] \quad (28)$$

mit der Amplitude

$$\xi_1 = \xi_{10} e^{ik_1 z} (1+i\xi)^{-1} \exp \left[\frac{-k_1 r^2}{b(1+i\xi)} \right] \quad (29)$$

Für die Polarisierung ergibt sich

$$\vec{P}_{NL}(\omega_3=3\omega_1) = \frac{1}{4} \chi^{(3)} \xi_{10}^3 e^{ik_3 z} (1+i\xi)^{-3} \exp \left[\frac{-k_3 r^2}{b(1+i\xi)} \right] B(z) , \quad (30)$$

wobei $B(z) = \begin{cases} 1 & \text{für } z > 0 \\ 0 & \text{sonst,} \end{cases}$

$\chi^{(3)}$ die nichtlineare Suszeptibilität 3. Ordnung und
 z die Strahlausbreitungsrichtung
 ausdrückt.

Setzt man die Beziehungen (29), (30) in die Wellengleichung ein und integriert über den Querschnitt des Strahls, so erhält man nach längerer Rechnung für die erzeugte Leistung der dritten Harmonischen (siehe Ward und New sowie Bjorklund /30,31/).

$$P_3 = \frac{cn_3}{8\pi} \int 2\pi \vec{r} |\epsilon_3|^2 d\vec{r} = \frac{768 \pi^6}{n_1 n_3 \lambda_1^4 c^2} |\chi^{(3)}|^2 |F_3|^2 P_1^3 \quad (31)$$

mit dem Phasenintegral

$$F_3(b\Delta k) = \int_{-\xi}^{+\xi} d\xi' \frac{e^{-i \frac{b}{2} \Delta k \xi'}}{(1+i\xi')^2} \quad (32)$$

Es zeigt sich somit nicht eine Beziehung zwischen Intensitäten (wie im Fall der ebenen Welle), sondern zwischen Leistungen. Die Leistung der dritten Harmonischen ist der dritten Potenz der Pumpleistung proportional. Wieder beinhaltet der $\chi^{(3)}$ -Term eine quadratische Abhängigkeit vom Druck. Im Phasenintegral $F_3(b\Delta k)$ sind die Länge des Mediums sowie die Wellenvektordifferenz Δk enthalten.

Einen einfachen Ausdruck für das Phasenintegral erhält man im Falle starker Fokussierung, d.h. wenn die Länge der Zelle wesentlich größer als der konfokale Parameter b ist ($b \ll L$). In diesem Fall läßt sich die Integration in Gleichung (32) von $-\infty$ bis $+\infty$ erstrecken mit dem Resultat:

$$F_3(b\Delta k) = \begin{cases} \pi(b\Delta k) e^{b\Delta k/2} & \text{für } \Delta k < 0 \\ 0 & \text{für } \Delta k \geq 0 \end{cases} \quad (33)$$

Es zeigt sich das interessante Ergebnis, daß sowohl in einem positiv dispersiven Medium ($\Delta k > 0$) als auch in einem dispersionsfreien Medium ($\Delta k = 0$) keine dritte Harmonische erzeugt wird.

Nur in Medien mit negativer Dispersion kann nach dieser Theorie eine dritte Harmonische erzeugt werden, wobei sich für $b\Delta k = -2$ ein Maximum ergibt. Dies ist insofern verständlich, weil ein fokussierter Gauß'scher Strahl über seinen Brennpunkt eine Phasenverschiebung erfährt. Bei dem oben angegebenen optimalen Wert von $b\Delta k$ sind die Phasenverschiebungen von Pumpwelle und dritter Harmonischer gerade identisch.

Zum Abschluß sei noch die Formel für die Leistung der m -ten Harmonischen im Fall starker Fokussierung angegeben.

Nach längerer Rechnung folgt /31, 32/

$$P_m = \frac{2^{m+5} \pi^{m+3} m}{n_1 n_m \lambda_1^4 c^{m-1}} |\chi^{(m)}|^2 \left(\frac{4}{b \lambda_1} \right)^{m-3} |F_m(b\Delta k)|^2 P_1^m \quad (34)$$

mit

$$F_m(b\Delta k) = \begin{cases} \frac{2\pi}{(m-2)!} (b\Delta k/2)^{m-2} e^{b\Delta k/2} & \text{für } \Delta k < 0 \\ 0 & \text{für } \Delta k \geq 0 \end{cases} \quad (35)$$

Die erzeugte Leistung der m-ten Harmonischen ist proportional der m-ten Potenz der Pumpleistung. Wiederum kann nur im Falle negativer Dispersion ($\Delta k < 0$) eine m-te Harmonische erzeugt werden. Optimale Konversion in die m-te Harmonische erhält man für

$$b\Delta k_m = -2 (m-2) . \quad (36)$$

2.4 Einfluß von Konkurrenzprozessen

Wie bereits erwähnt, treten bei der Wechselwirkung von Licht hoher Intensität mit einem nichtlinearen Medium neben der Frequenzvervielfachung noch andere nichtlineare Prozesse auf, welche die Konversion in die Harmonische beeinflussen können. Oft wird die Konversion vermindert, doch kann auch das Gegenteil eintreten, z.B. dann, wenn durch einen nichtlinearen Brechungsindex die Phasenanpassung verbessert wird. Die Konversion verringert sich auf jeden Fall, wenn Konkurrenzprozesse so stark auftreten,

daß sie zu einer Entleerung oder Absorption der Pumpe führen, wie es z.B. bei stimulierter Ramanstreuung und Zweiphotonenabsorption vorkommt.

Im allgemeinen werden die Konkurrenzprozesse danach eingeteilt, ob sie auf Δk , $\chi^{(m)}$ oder auf I_1 (bzw. P_1) wirken. In der nachstehenden Tabelle sind einige nichtlineare Effekte dementsprechend klassifiziert.

Effekt	Wirkung auf	Auswirkung
Starkverschiebung	χ	Sättigung der nichtlin. Suszeptibilitäten
Kerr-Effekt	Δk , I_1	Änderung der Phasenanpassung, u.U. Selbstfokussierung
Zweiphotonenabsorption	I_1	Absorption der Pumpstrahlung
Mehrphotonenionisation	I_1	Dielektrischer Durchbruch
SRS, SBS	I_1	Entleerung der Pumpstrahlung

Schließlich muß bei manchen Medien auch die lineare Absorption von Pumpwelle oder Harmonischer berücksichtigt werden. Dabei bleibt es dem Geschick des Experimentators überlassen, unerwünschte Konkurrenzprozesse durch entsprechende Wahl der experimentellen Bedingungen (Medium, Art der Fokussierung) nach Möglichkeit auszuschalten. Meist ist jedoch bei hohen Pumpintensitäten eine Sättigung der Konversion, z.B. durch Auftreten höherer Nichtlinearitäten, kaum zu vermeiden.

3. Versuchsanordnung

3.1 Überblick

In den Experimenten dieser Arbeit wurden Jodlaserpulse ($\lambda = 1,3152 \mu\text{m}$) durch Frequenzkonversion in VUV- und XUV-Pulse umgewandelt. Zwei in ihrer Art unerschiedliche Experimente sind durchgeführt worden:

1. Erzeugung der dritten Harmonischen von Jodlaserlicht ($\lambda = 438 \text{ nm}$) in Kristallen und anschließende Frequenzvervielfachung in Edelgasen.
2. Direkte Erzeugung von VUV-Pulsen aus Jodlaserlicht in Edelgasen.

Mit der dritten Oberwelle als Pumpstrahlung (Pumplicht) konnte die neunte ($\lambda = 146,1 \text{ nm}$) und die fünfzehnte ($\lambda = 87,7 \text{ nm}$) Harmonische des Jodlasers generiert werden. Bei der direkten Erzeugung gelang es, die neunte und die elfte ($\lambda = 119,6 \text{ nm}$) Harmonische von Jodlaserlicht zu gewinnen. Die elfte Harmonische ist - soweit bekannt - die höchste Oberwelle, die durch Frequenzumwandlung kohärent erzeugt wurde.

Gewinnung und Nachweis der kurzwelligen Strahlung erfolgte mit einem im Rahmen dieser Arbeit gebauten UV-Spektrometer. Bei Wellenlängen größer als 100 nm befand sich das nicht-lineare Medium (Edelgase) in einer Zelle mit LiF-Fenster. Da es für die fünfzehnte Harmonische ($\lambda = 87,7 \text{ nm}$) keine

transparenten Fenstermaterialien gibt, fand die Frequenzumwandlung in einem von einer Düse gepulst emittierten Gasstrahl statt. Die Strahlung wurde für $\lambda > 100 \text{ nm}$ von einem geschlossenen (MgF_2 -Fenster) und für $\lambda = 87,7 \text{ nm}$ von einem fensterlosen Photomultiplier aufgezeichnet. Wichtigster experimentell bestimmter Parameter war hierbei der für die verschiedenen Harmonischen und nichtlinearen Medien in Abhängigkeit von der Dichte des Mediums und der Leistung des Pumpulses gemessene Umwandlungswirkungsgrad.

Eine schematische Darstellung der Gesamtapparatur, bestehend aus Pumplaser, Kristallen zur Frequenzkonversion, Spektrometer und Detektionssystem, ist in Abb. 3 (Seite 27) zu sehen.

3.2 Pumpstrahlung

3.2.1 Oszillator-Verstärker-System bei $1,3 \text{ }\mu\text{m}$

Als Pumplaser wurde das Oszillator-Verstärker-System "Asterix II" verwendet /33, 34/. Der Laser setzte sich aus einem modengekoppelten Oszillator, einem Pulsschneidesystem mit Pockelszelle und zwei Verstärkern zusammen (s. Abb.4, Seite 28). Seine maximale Ausgangsenergie betrug bei einer Pulsdauer von 750 ps 600 mJ . Die Winkeldivergenz des Strahls war bei einem Strahldurchmesser von 22 mm etwa dreimal beugungsbegrenzt. Alle zwei Minuten konnte ein Laserschuss abgefeuert werden. Bei jedem Schuss wurde die Ausgangsenergie mitgemessen. In periodischen Abstän-

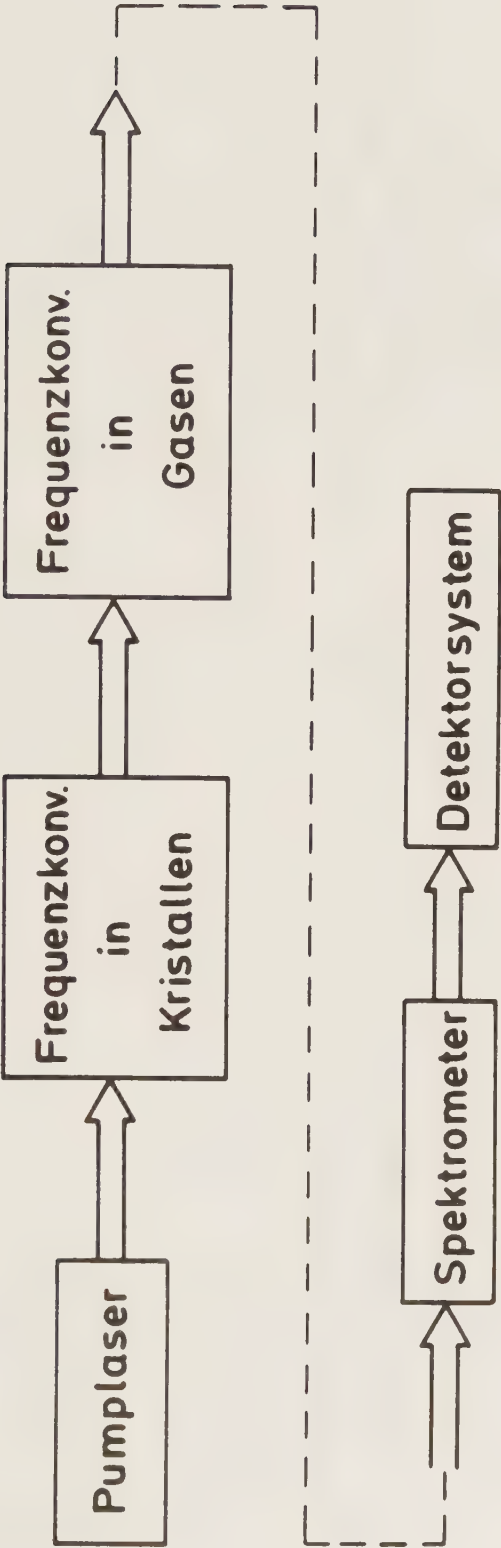


Abb. 3:
Schema des Versuchs

den wurden auch die übrigen Parameter (Winkeldivergenz und Pulsdauer) kontrolliert. Nachstehende Tabelle zeigt die wichtigsten Parameter des Pumplasers nochmals zusammengefaßt:

Wellenlänge	1,3152 μm
Maximale Ausgangsenergie	600 mJ
Pulsdauer	750 ps
Polarisation	linear
Winkeldivergenz	3mal beugungsbegrenzt.

3.2.2 Fundamentalstrahlung bei 438 nm durch Frequenzkonversion in Kristallen

Durch nichtlineare Wechselwirkung in Kristallen kann Jodlaserlicht mit hohem Wirkungsgrad in Licht im Sichtbaren oder UV umgewandelt werden /35, 36/. Deshalb wurde bei einem Teil der vorliegenden Versuche die dritte Harmonische des Jodlasers bei 438 nm als Pumpstrahlung verwandt, um mit kurzwelliger Ausgangsstrahlung möglichst weit ins UV vorzudringen. Die Konversion der Jodlaserpulse in die dritte Harmonische ist mit Hilfe von zwei KD*P-Kristallen durchgeführt worden. KD*P (= $\text{KD}_2^{*}\text{PO}_4$ deuterierte Version von Kaliumdihydrogenphosphat) zeichnet sich nämlich durch eine hohe optische Zerstörungsschwelle, große Transparenz im Sichtbaren und im Infraroten (1,3152 μm) aus. Darüber hinaus ist eine vollständige Phasenanpassung aufgrund der Doppelbrechung in einem weiten Frequenzbereich möglich.

Zur Erzeugung der dritten Harmonischen von Jodlaserpulsen durchlief der Puls nacheinander zwei KD*P-Kristalle, die mit unterschiedlichem Winkel zur optischen Achse geschnitten waren, wobei der erste Kristall die zweite Harmonische erzeugte ($\omega + \omega \rightarrow 2\omega$) und im zweiten Kristall durch Summenfrequenzbildung die dritte Harmonische entstand ($\omega + 2\omega \rightarrow 3\omega$). Um möglichst hohe Umwandlung in 3ω zu erreichen, fand ein von Craxton /37, 38/ angegebenes Schema Anwendung, bei dem durch geeignete Wahl der azimutalen Kristallwinkel die Fundamental- und Harmonischenwellen optimal genutzt werden. Damit eine genügend hohe Intensität im Kristall erreicht werden konnte, ist der Pumplaserstrahl durch ein Kepler'sches Teleskop auf einen Durchmesser von 5,5 mm eingeengt worden. Mit dieser Anordnung war es möglich, etwa 50 % des Pumplichtes in die dritte Harmonische zu konvertieren. Die restliche Strahlung der Grundwelle bzw. der zweiten Harmonischen eliminierten geeignete Filter (Schott BG 7). Die Werte der Pulsdauer und Winkeldivergenz der dritten Harmonischen entsprachen im wesentlichen denen der Pumpstrahlung. (Nur bei kleinem Umwandlungsgrad erreicht man eine Pulsverkürzung etwa um den Faktor $\sqrt{3}$.)

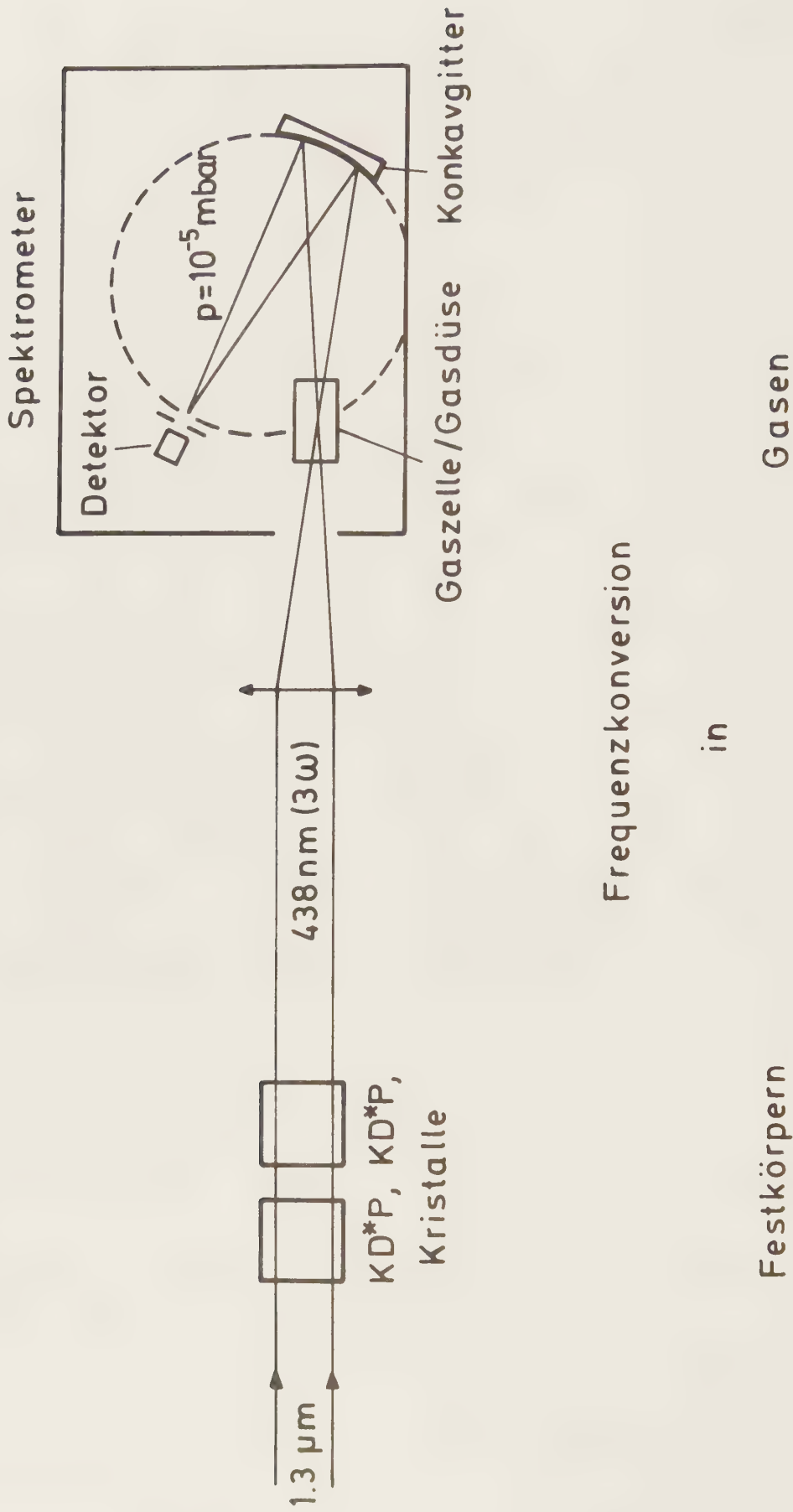
3.3 Spektrometer

Der hier Spektrometer genannte Aufbau bestand aus einem gefrästen Aluminiumgefäß, in dem sich das nichtlineare Medium (Zelle oder Gasstrahl), das Reflexionsgitter und der Photomultiplier befanden (s. Abb. 5, Seite 32). Das Gitter wurde in einer nach Seya-Namioka benannten Anordnung aufgestellt, was bedeutet, Eingangss- und Ausgangsspalt sind fest auf einen Kreis mit dem Durchmesser des Krümmungsradius des Gitters montiert. Als "Eingangsspalt" diente in diesem Falle der Fokus des Pumpstrahls. Im Brennpunkt fand auch die nichtlineare Wechselwirkung statt.

Das Gitter (American Holographic, 1800 ℓ/mm) hatte einen Krümmungsradius von 0,2 m. Es war zur besseren Reflexion mit Osmium beschichtet. Zum Nachweis der verschiedenen Wellenlängen konnte das Gitter über eine Mikrometerschraube mit Vakuumdurchführung von außen gedreht werden. Der Spektrograph war auf einen Druck von 10^{-5} mbar (= 1 mPa) evakuiert, um eine Absorption des erzeugten VUV-Lichts zu vermeiden.

3.4 Gaszelle

Bei den Experimenten mit Strahlung über 100 nm ($\lambda > 100$ nm) befand sich das nichtlineare Medium in einer kleinen Gaszelle (Abb. 6, Seite 33). Diese war im Spektrometer so aufgestellt, daß der Brennpunkt des Pumpstrahls in der Mitte der Gaszelle



Frequenzkonversion

in

Festkörpern

Gasen

Abb. 5:
Versuchsanordnung

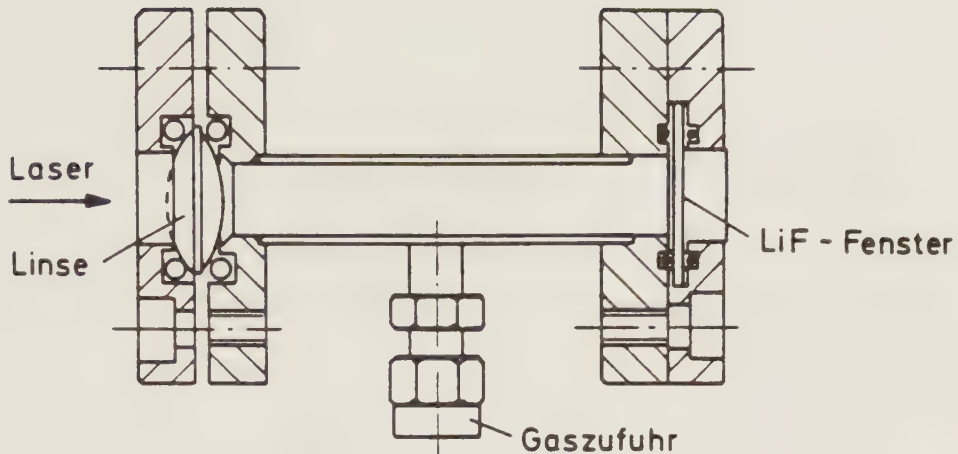


Abb. 6:
Schematische Darstellung der Gaszelle

lag. Gleichzeitig bildete die Fokussierungslinse ($f = 37 \text{ mm}$) das Eingangsfenster der Zelle. Das Ausgangsfenster bestand aus einer LiF-Scheibe von 2 mm Dicke. Durch ein MKS-Baratron wurde der Druck in der Zelle gemessen.

3.5 Gasdüse

Bei Wellenlängen unter 110 nm fängt auch LiF, das Material mit der kürzestwelligen Absorptionskante, an, stark zu absorbieren. Deshalb schied für das nichtlineare Medium die Gaszelle zum Nachweis der fünfzehnten Harmonischen bei 87,7 nm aus. Im "fensterlosen Ultraviolett" ($\lambda < 110 \text{ nm}$) dagegen boten sich zwei Methoden an, ein Gasmedium mit einer brauchbaren Dichte zu erhalten:

1. differentiellles Pumpen /39-42/ ,
2. gepulster Gasstrahl /43-47/.

In den vorliegenden Experimenten wurde wegen des geringeren Platzbedarfs die zweite Methode gewählt. Es ist eine Apparatur gebaut worden, die es erlaubte, einen gepulsten Gasstrahl aus einer Düse - etwa 1 mm über dem Fokus des Pumplaserstrahls - zu emittieren. Das Gerät bestand aus einer Halterung, welche die Düse, eine Düsenöffnungsmechanik und eine Justiervorrichtung enthielt (Abb. 7, Seite 35). Ein elektronischer Pulser schaltete die elektrische Ansteuerung zeitsynchron mit dem Laserpuls. In der Düse selbst befand sich ein plangeschliffenes Bosch-Einspritzventil und ein V2A-Plättchen mit einer Bohrung von 500 μm Durchmesser. Die Halterung hatte zwei gekreuzte Schlitten sowie eine vertikale Spindel, wodurch die Düse nach Bedarf in x-, y- und z-Richtung verstellt werden konnte. Zum Öffnen der Düse wurde ein Stift, den eine Feder niederdrückte, von einer Magnetspule nach oben gezogen. Eine Transistorschaltung nach dem Muster von Otis und Johnson /45/ erzeugte den zum Ansteuern des Ventiles nötigen Puls. Die Leckrate war bei geschlossener Düse so gering, daß sich auch bei maximalem Druck vor der Düse (20 bar = 2 MPa) noch ein Vakuum von 10^{-4} mbar (= 10 mPa) im Spektrometer hielt. Mittels eines HeNe-Lasers wurde die Geschwindigkeit des Verschlußstiftes beim Öffnen der Düse gemessen. Das Oszillographenbild (Abb. 8,9; Seite 36) läßt auf eine Düsenöffnungszeit von etwa 250 μs schließen. Der Laserpuls wurde jeweils 1,5 ms nach Öffnen der Düse ausgelöst.

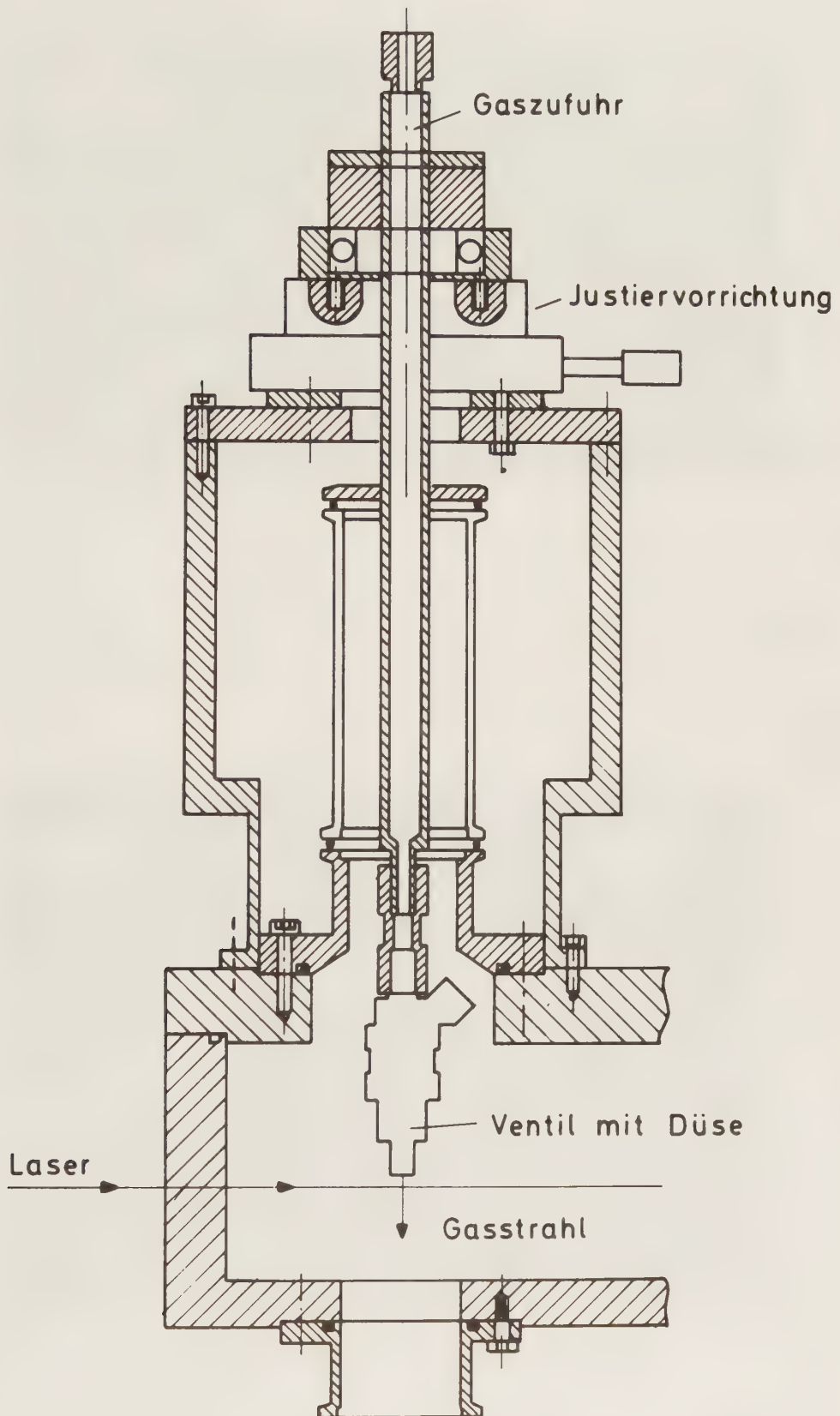


Abb. 7:
Darstellung der Düsenstrahlanordnung

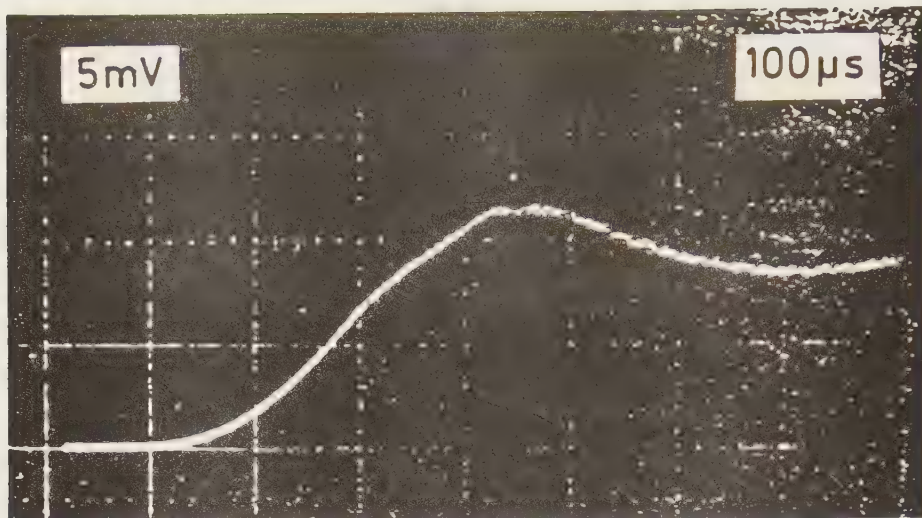


Abb. 8: Anstiegszeit beim Öffnen des Ventils

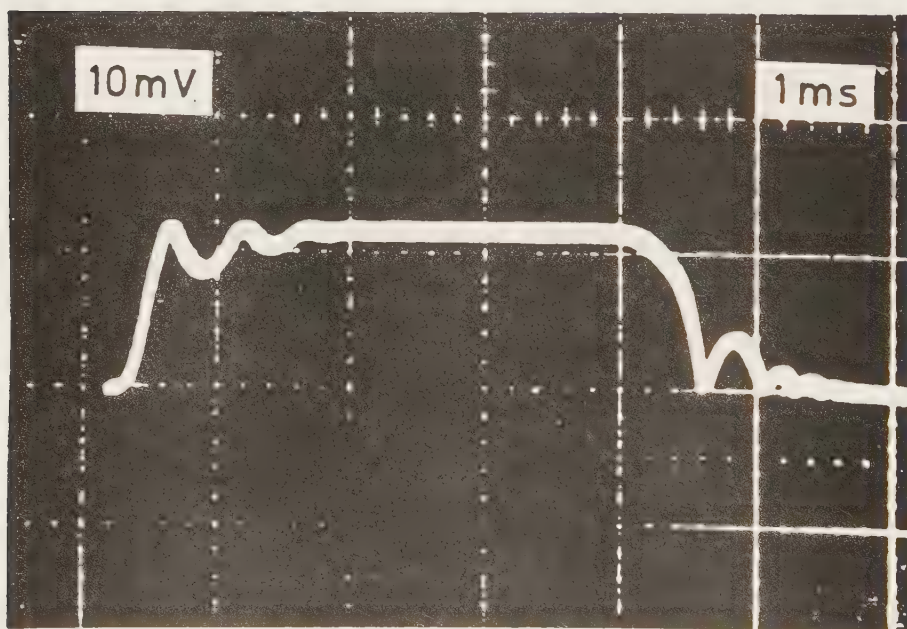


Abb. 9: Düsenöffnungszyklus

Die am Fokus des Pumplasers herrschende Dichte wurde nach der Theorie für Düsenstrahlen im Überschallbereich (hypersonische Entspannung) berechnet (s. Anhang 1). Das Ergebnis ist in Abb. 10 (Seite 38) dargestellt. Durch Variation des Hintergrunddrucks vor der Düse zwischen 0,25 MPa und 2 MPa stellte sich am Ort des Brennpunkts - 1 mm hinter der Düse - ein Druck zwischen 3,5 hPa und 70 hPa ein. Aus der Temperatur in 1 mm Abstand zur Düse errechnet sich die Teilchendichte bei einem Strahldurchmesser von 2 mm (Abb. 11, Seite 39).

3.6 Detektorsysteme

Den Nachweis der erzeugten Strahlung lieferten zwei verschiedene Photomultiplier (PMP). Für 9 ω und 11 ω verwendete man einen geschlossenen Photomultiplier mit MgF₂-Fenster, für 15 ω einen offenen PMP.

Kalibriert wurde der geschlossene Photovervielfacher mit Synchrotronstrahlung an Bessy in Berlin /49/. In Abb. 12 (Seite 40) ist die gemessene Quantenausbeute der CsI-Kathode gegen die Wellenlänge aufgetragen.

Aus der Quantenausbeute und dem Verstärkungsfaktor konnte die absolute Energie des VUV-Pulses ermittelt werden.

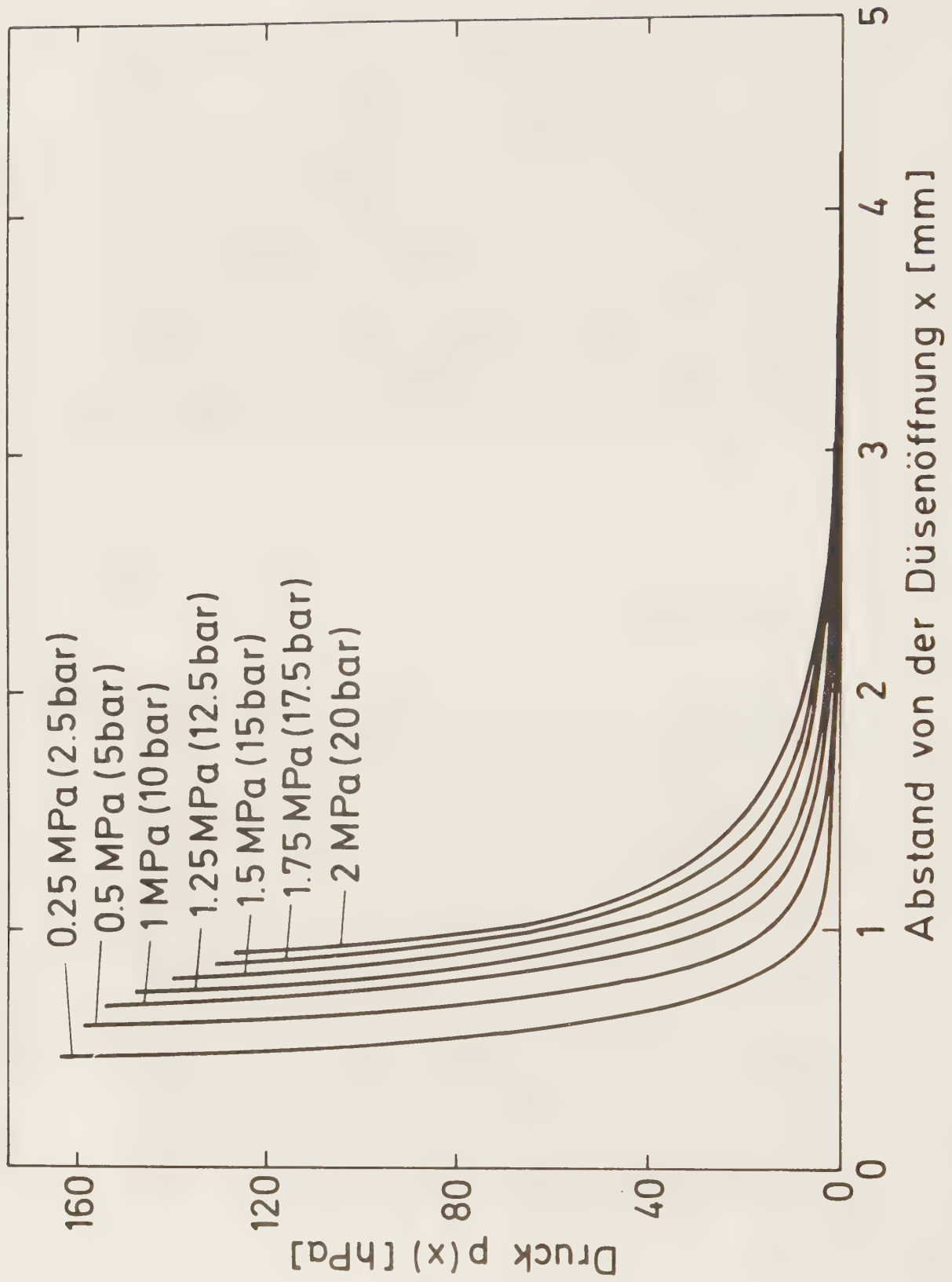


Abb. 10:
Berechneter Druck im Düsenstrahl

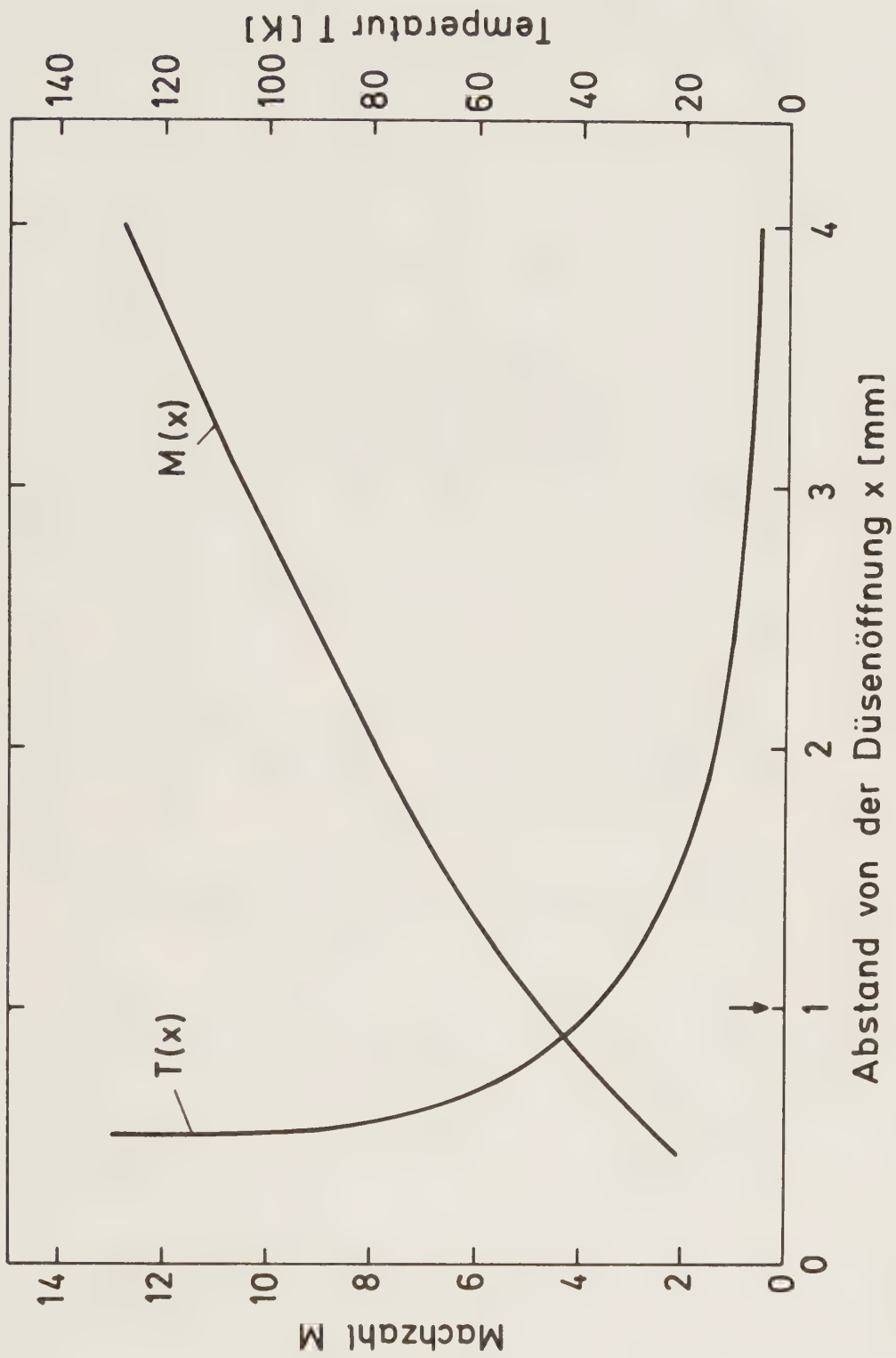


Abb. 11:
Darstellung berechneter Strahlparameter

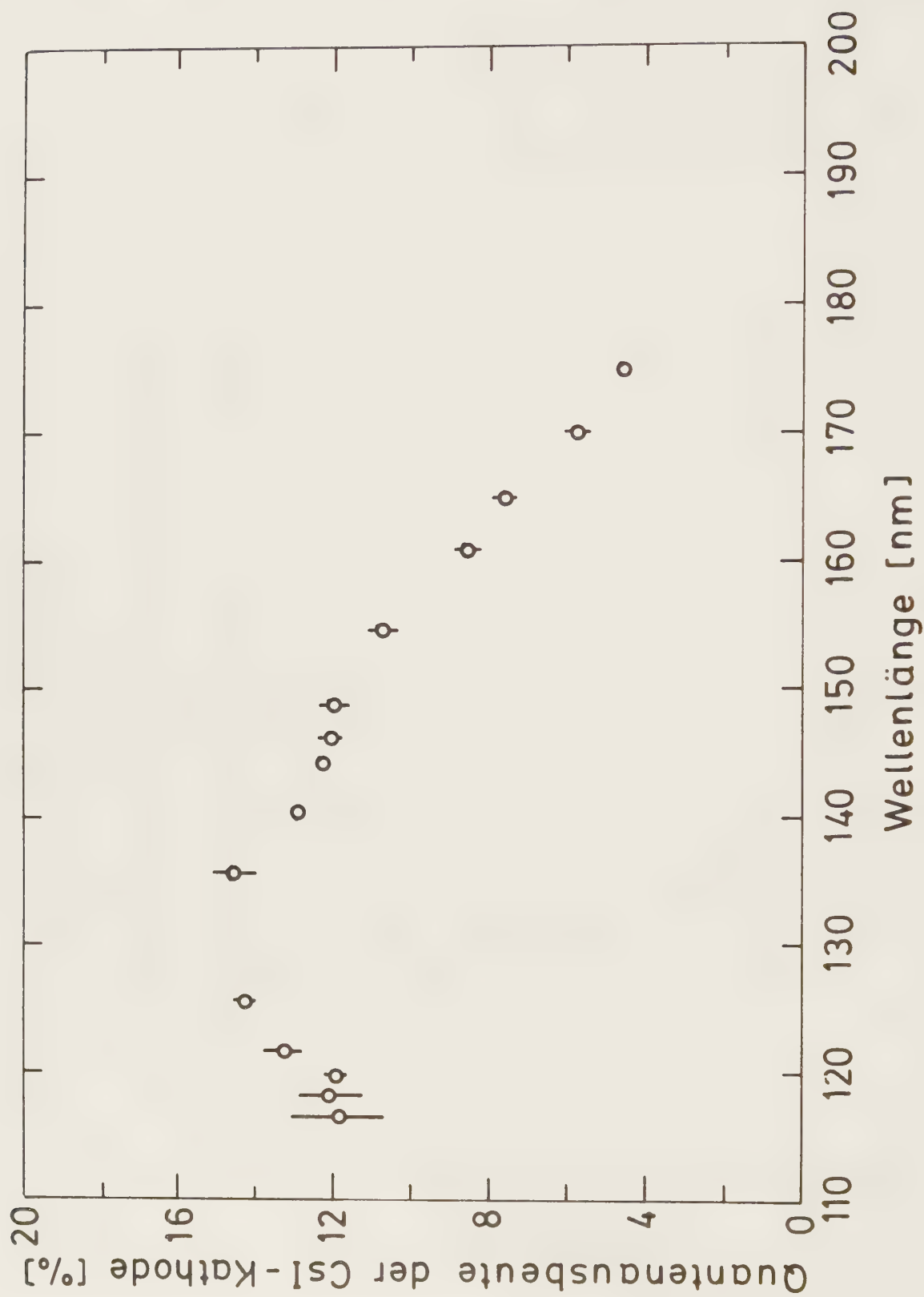


Abb. 12:
Quantenausbeute des EMR - Photomultipliers mit Fenster

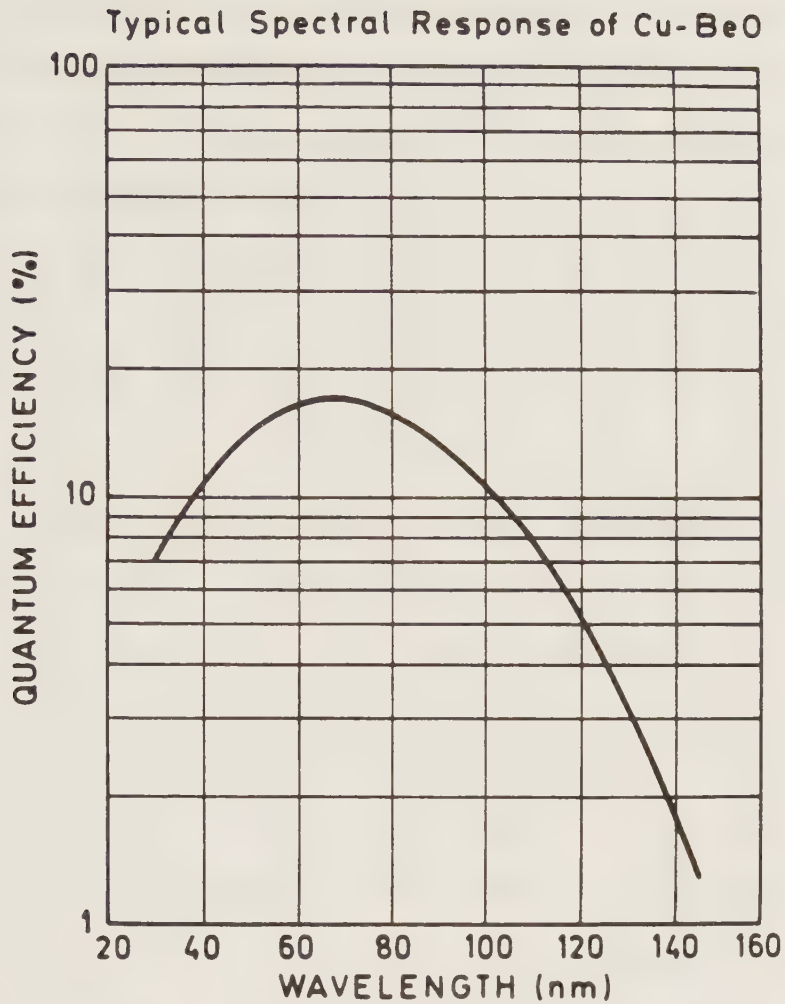


Abb.13:
Quantenausbeute des offenen Photo-
multipliers

Der fensterlose Photomultiplier (Hamamatsu R 474) war mit einer Kupferberylliumoxid-Kathode versehen. Die Quantenausbeute, die aus dem Datenblatt entnommen wurde (Abb. 13), betrug ca. 15 % bei 88 nm. Da die Anstiegszeit beider Photomultiplier wesentlich mehr als 1 ns betrug, war eine Zeitauflösung des erzeugten VUV- bzw. XUV-Pulses nicht möglich.

Zur Aufnahme eines energieproportionalen Signals mußte das erzeugte VUV- bzw. XUV-Licht stark abgeschwächt werden, um eine Sättigung des Photomultipliers zu vermeiden. Dies geschah durch eine Serie von übereinander gelegten Maschengittern vor dem Photovervielfacher. Die Transmission des Gitterstapels wurde im Sichtbaren gemessen. Weil es sich um eine mechanische Abdeckung handelte und Beugungseffekte vernachlässigbar waren, wurde dieselbe Transmission auch für den VUV- bzw. XUV-Puls angenommen. Bei 119,6 nm und 146,1 nm verwendete man zusätzlich Interferenzfilter (Acton-Research) von 2,5 nm Bandbreite, deren Transmissionskurven ebenfalls an Bessy vermessen worden sind /49/.

Die Abschirmung des Detektierungssystems gegen elektromagnetische Einstreuung durch den Pumplaser stellte ein besonderes Problem dar. Schwierigkeiten bereiteten die schnellen Entladungen der zum Betrieb der Blitzlampen verwendeten Kondensatoren. Diese waren eine äußerst effektive, nur bei sorgfältigster Abschirmung auszuschaltende Störquelle. Bei den vorliegenden Experimenten befand sich der Photomultiplier in einem Gehäuse, das von den übrigen Spektrometerteilen isoliert war. In Kupferrohren von 1 mm Wandstärke, in denen auch die Signalleitung verlief, wurde die Arbeitsspannung zugeführt. Die Spannungsversorgung und die Oszillographen für die Messung des Signals befanden sich in einer Meßkabine.

Nur durch diese Maßnahmen sowie durch Filter und verschiedene Abdeckbleche im Spektrometer gelang es, die Störsignale weitgehend zu unterdrücken. Es wurden Testschüsse durchgeführt, bei denen

a) kein nichtlineares Medium vorhanden (Gaszelle evakuiert bzw. Düse außer Betrieb) war

oder

b) sich das Gitter aus der richtigen Stellung gedreht befand, so daß die erste Ordnung nicht auf den Detektor fiel.

Da in beiden Fällen kein Signal gesehen wurde, kann man davon ausgehen, daß die mit Medium und richtiger Gitterstellung gemessenen Signale mit Sicherheit von frequenzkonvertierten VUV- bzw. XUV-Pulsen stammen.

4. Experimentelle Ergebnisse

4.1 Übersicht

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die neunte, elfte und fünfzehnte Harmonische von Jodlaserlicht ($\lambda = 1,3152 \mu\text{m}$) erzeugt. Als nichtlineare Medien kamen Argon, Xenon, Helium und für 15ω auch Neon zum Einsatz. Bei allen Experimenten ist mit fokussierten Strahlen gearbeitet worden, wobei der Konversionswirkungsgrad in Abhängigkeit von der Pumpulsenergie und vom Druck des nichtlinearen Mediums gemessen wurde. Die Ergebnisse lassen sich mit den Vorhersagen der Theorie für fokussierte Strahlen (s. 2.3.2) vergleichen. Insbesondere kann überprüft werden, ob

- die erzeugte m-te Harmonische mit der m-ten Potenz der Pumpulsenergie ansteigt,
- die Abhängigkeit vom Druck wegen $\Delta k \sim p$ und $\chi \sim p$ mit $p^{2m-2} \exp(ap)$ erfolgt, wobei a ein konstanter Faktor ist,
- eine Harmonische nur bei negativer Dispersion erzeugt wird.

Weiter soll im Fall der m-ten Harmonischen eine $n\omega$ -Resonanz ($n \leq m$) eine wesentliche Erhöhung der Konversion bewirken. Durch die verschiedenen Kombinationen von nichtlinearen Medien/Ordnungen in der Harmonischen kommen bei den durchgeführten Experimenten sowohl positive als auch negative

Dispersion und Wechselwirkung mit und ohne resonantes Endniveau vor. Allerdings sind die Resonanzen niemals scharf (Frequenzunterschiede vergleichbar mit Linienbreiten). Diese liegen vielmehr mit einigen hundert Wellenzahlen Frequenzunterschied weit über der Linienbreite.

Tabelle 1 (Seite 46) gibt eine Übersicht über die durchgeführten Experimente und die hierbei erzielten Konversionswirkungsgrade.

Um Mißverständnisse zu vermeiden, wird im folgenden Licht der Pumpwelle bei 438 nm (= 3. Harmonische des Jodlasers) als dritte Harmonische und Licht bei 146,1 nm (= 9. Harmonische des Jodlasers) als neunte Harmonische benannt. ω bezeichnet immer die Frequenz des Jodlasers ($\lambda = 1315,2$ nm).

4.2 Neunte Harmonische ($3 \times 3\omega \rightarrow 9\omega$, $\lambda = 146,1$ nm)

Mit Pumplicht von $\lambda = 438$ nm wurde in Argon und Xenon die neunte Harmonische von Jodlaserlicht ($\lambda = 1315,2$ nm) erzeugt. Die Energieniveau-Schemata von Xenon und Argon sind in den Abb. 14 und 15 (S. 47-48) vereinfacht dargestellt. Hierin ist 9ω als virtuelles Niveau eingezeichnet. In beiden Gasen traten unterschiedliche physikalische Gegebenheiten auf. Bei Xenon /51, 52/ lag das virtuelle

Harmonische	λ [nm]	nichtl. Medium	Detektor	Energiekonv. $\omega \rightarrow$ Harmon.	Bemerkungen
3x3 $\omega \rightarrow$ 9 ω	146,13	Xe	Z	g	2.10 ⁻⁵ fast-resonant, negative Dispersion
		Ar	Z	g	9.10 ⁻⁸ nichtresonant, positive Dispersion
5x3 $\omega \rightarrow$ 15 ω	87,68	Ar	D	o	8.10 ⁻⁹ fast-resonant, positive Dispersion
		Ne	D	o	4.10 ⁻¹² nichtresonant, positive Dispersion
		He	D	o	7.10 ⁻¹⁴ nichtresonant, positive Dispersion
9x1 $\omega \rightarrow$ 9 ω	146,13	Xe	Z	g	4.10 ⁻¹¹ fast-resonant, negative Dispersion
1x1 $\omega \rightarrow$ 11 ω	119,56	Xe	Z	g	6.10 ⁻¹² fast-resonant, positive Dispersion

= Gaszelle, D = Düse, o = offener Photomultiplier, g = geschlossener Photomultiplier

Tabelle 1: Überblick über die durchgeführten Experimente

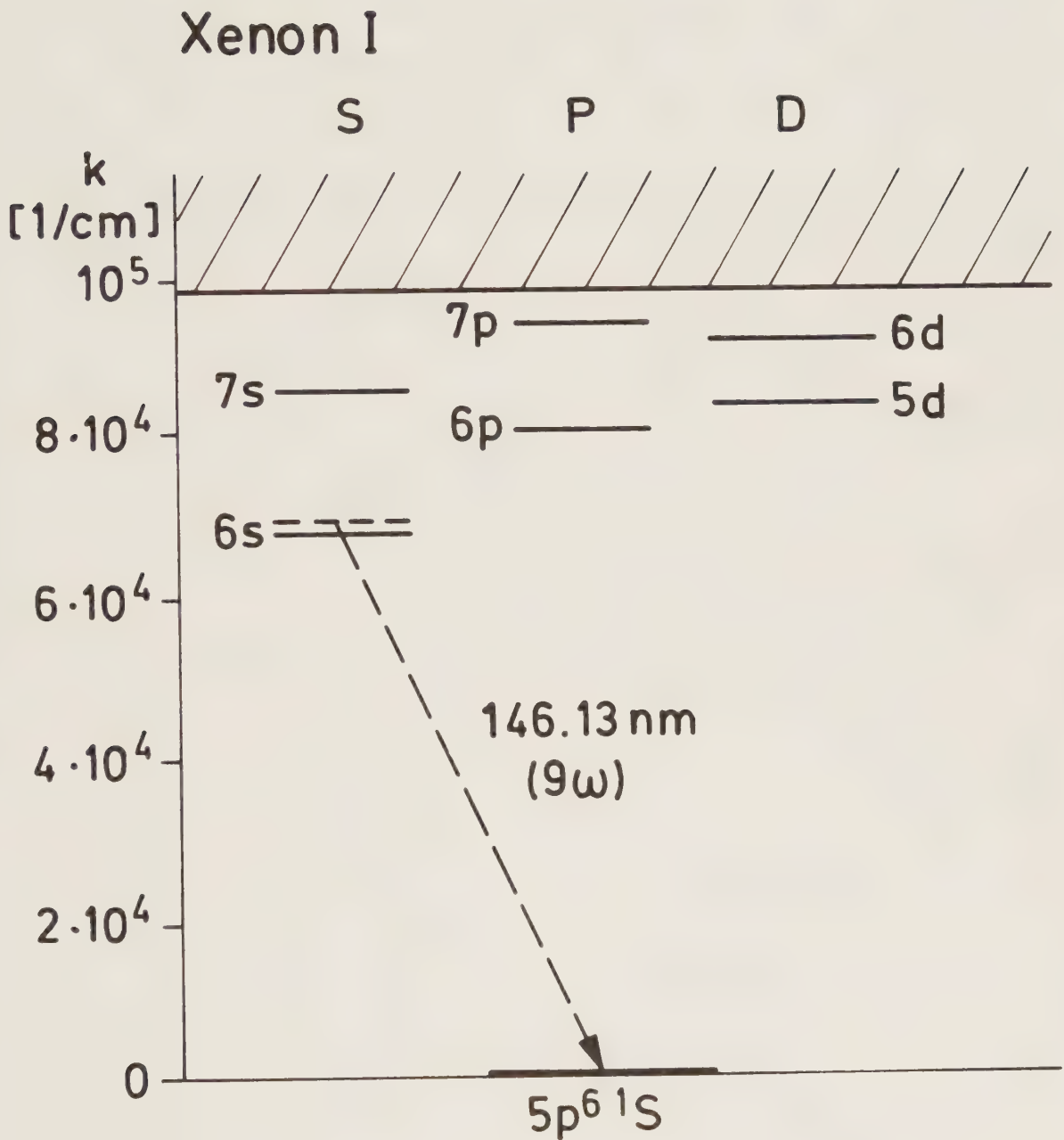


Abb. 14:
Vereinfachtes Energieniveauschema von Xenon

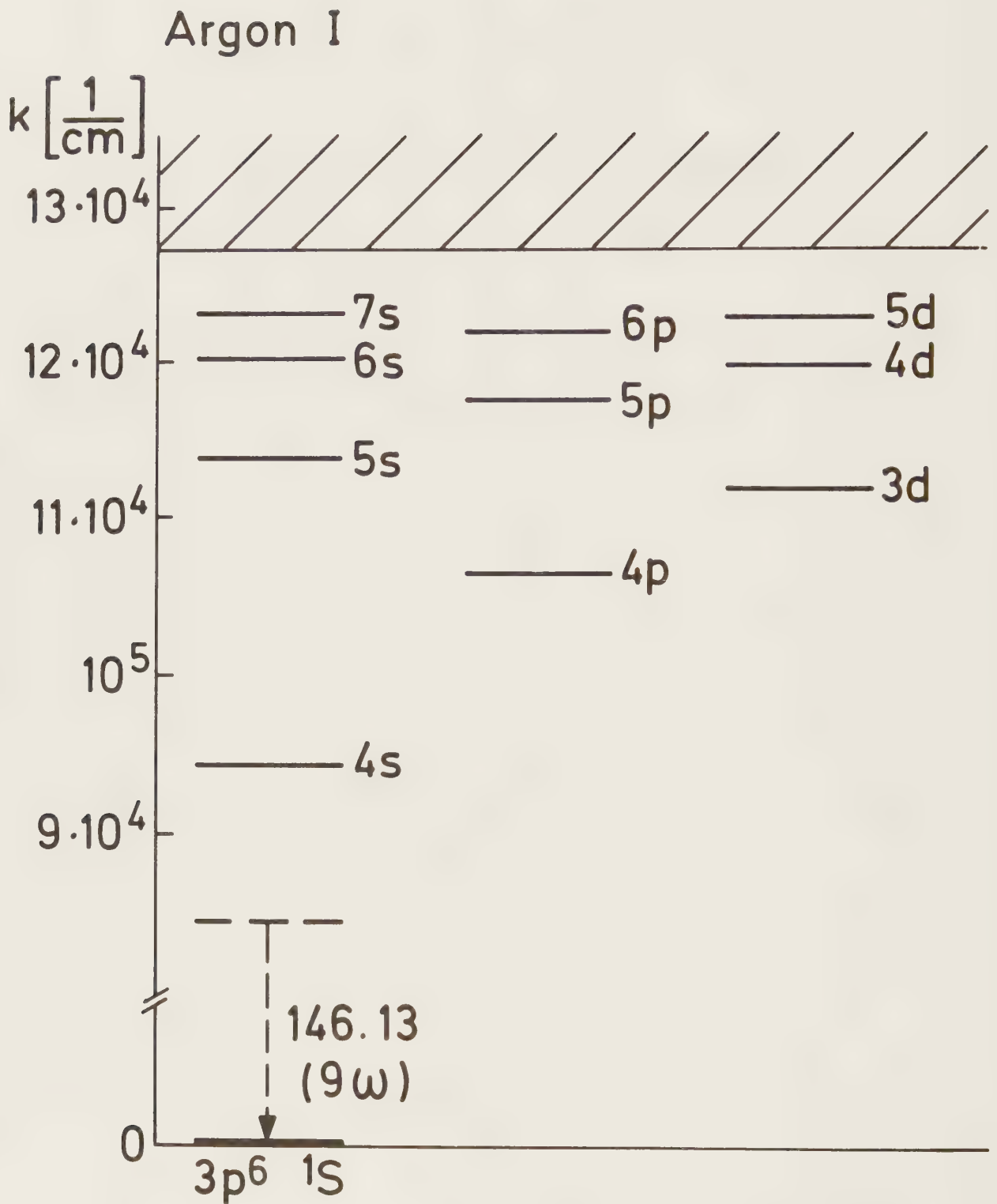


Abb. 15:

Vereinfachtes Energieniveauschema von Argon

9ω -Niveau 384 Wellenzahlen über dem Niveau $6s [3/2]^o$, das einen stark erlaubten Übergang zum Grundniveau mit hoher Oszillatorstärke ($f = 0,27$) /50/ aufwies. Demnach arbeitete man bei negativer Dispersion. Ferner durfte eine gewisse Erhöhung des $\chi^{(3)}$ durch die Resonanz erwartet werden. Hingegen liegt bei Argon positive Dispersion vor /51, 53, 54/. Ein Resonanzniveau befand sich nicht in seiner Nähe.

Die Ergebnisse - 9ω -Energie gegen den Druck des Mediums und gegen die Energie der Grundwelle ($\lambda = 438 \text{ nm}$) - sind in den Abbildungen 16 und 18 (Seiten 49, 51) für Xenon und in den Abbildungen 17 und 19 (Seiten 50, 52) für Argon aufgetragen.

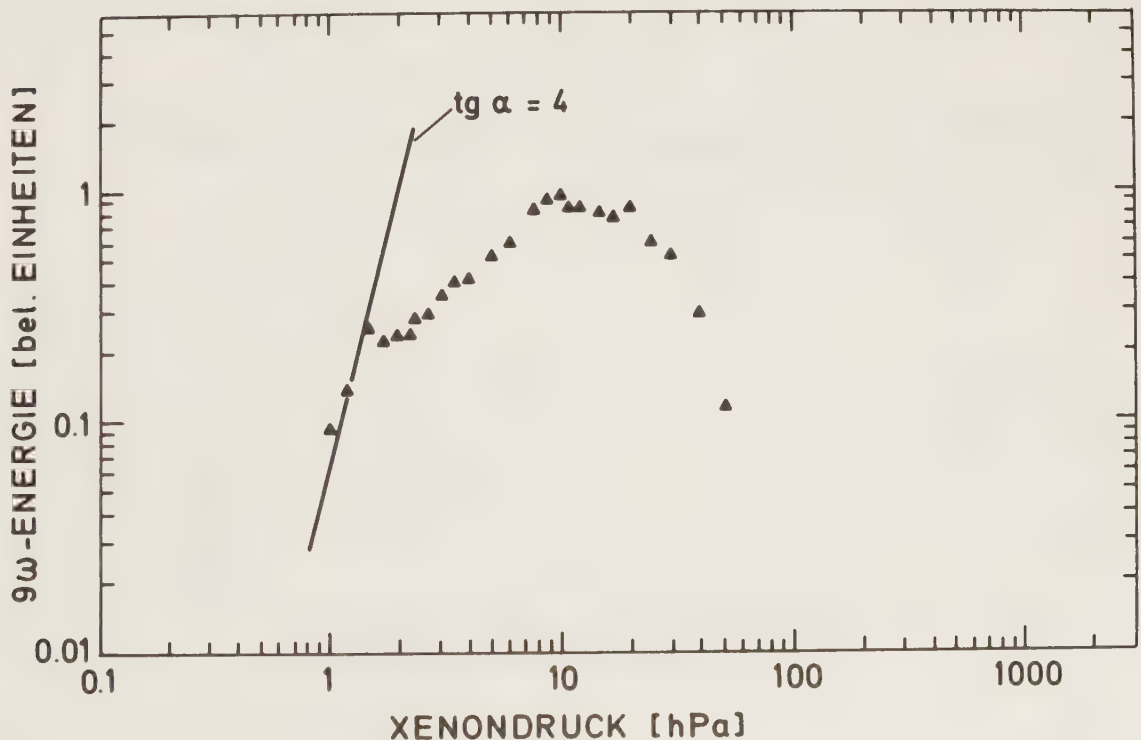


Abb. 16:

Abhängigkeit der neunten Harmonischen vom Xenondruck ($E_p = 40 \text{ mJ}$)

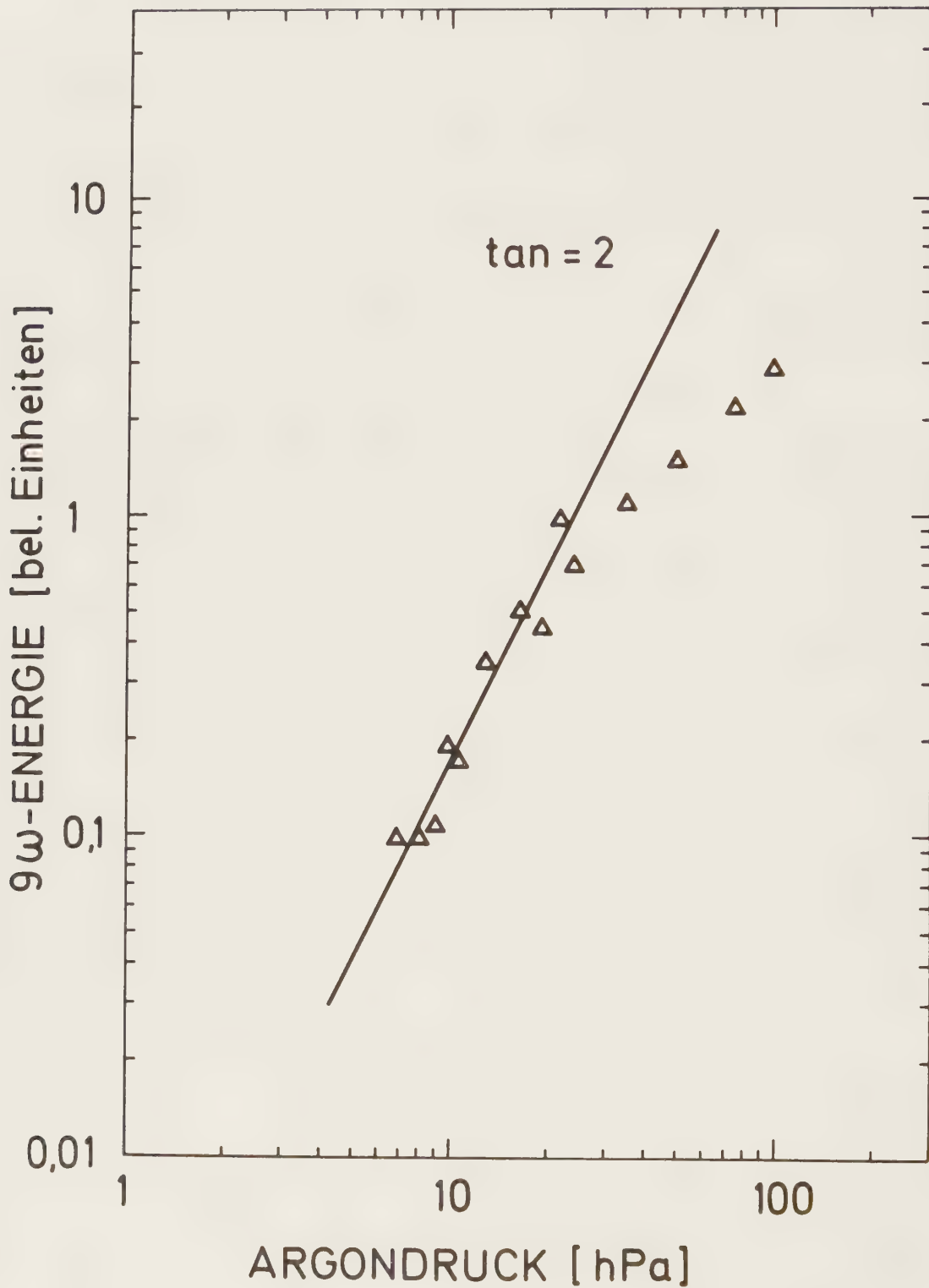


Abb. 17:

Abhängigkeit der neunten Harmonischen vom Argondruck ($E_p = 40 \text{ mJ}$)

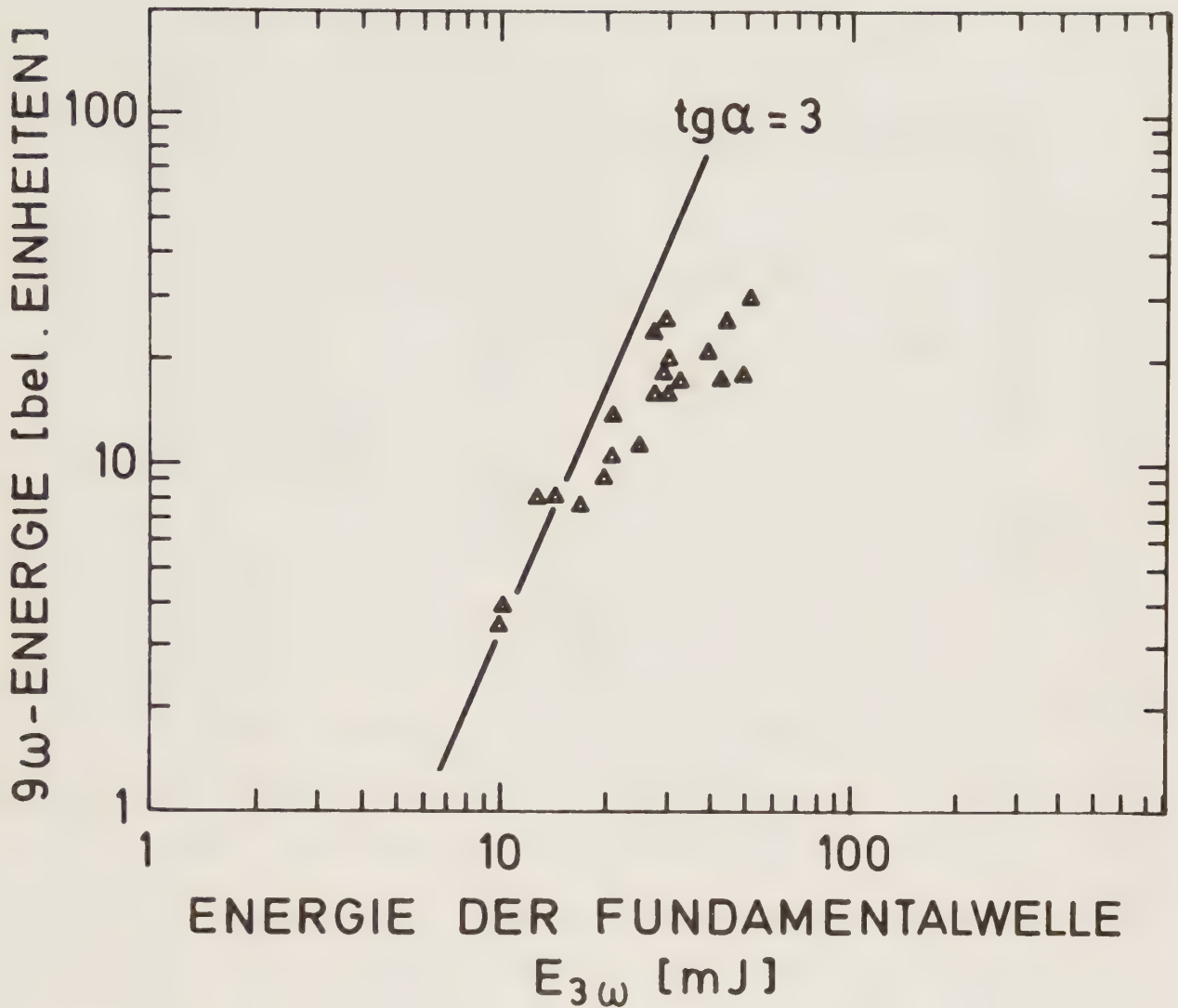


Abb. 18:

Energieabhängigkeit der neunten Harmonischen
in Xenon ($p_{\text{Xe}} = 10 \text{ hPa}$)

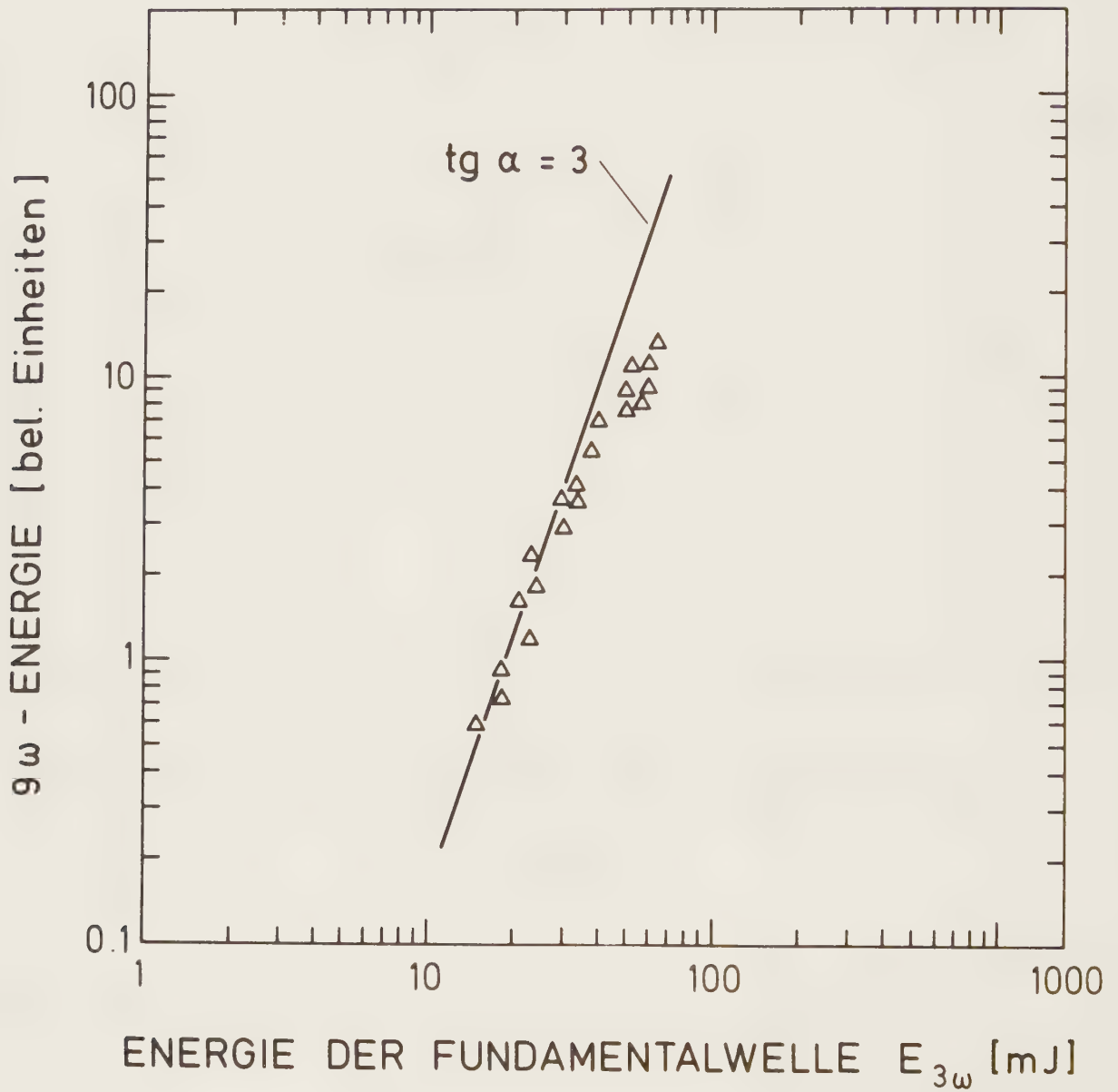


Abb. 19:

Energieabhängigkeit der neunten Harmonischen
in Argon ($p_{\text{Ar}} = 100 \text{ hPa}$)

Aus den Kurven für Xenon ergibt sich, daß die erzeugte Harmonische, wie von der Theorie gefordert, mit der dritten Potenz der Energie des Pumpulses zunimmt. Bei Pumpulsenergien größer als etwa 20 mJ zeigt sich jedoch eine gewisse Sättigung, wobei die 9 ω -Energie unter den im Diagramm durch die Gerade mit Steigung 3 gegebenen theoretischen Wert fällt. Die maximal erreichte Konversion betrug $2 \cdot 10^{-5}$ bei 10 hPa Xenondruck. Nach einem steilen Anstieg wiesen die Meßpunkte für die Druckabhängigkeit bei niedrigen Drücken ein Maximum bei $p = 20$ hPa auf.

Anders als in Xenon findet die Wechselwirkung in Argon unterhalb des ersten Resonanzniveaus und somit in einem Gebiet positiver Dispersion ($n(146 \text{ nm}) > n(438 \text{ nm})$) statt. Aus diesem Grunde sollte nach der Theorie von Kapitel 2.3.2 bei der neunten Harmonischen überhaupt kein Licht erzeugt werden. Experimentell zeigt sich, daß doch Frequenzkonversion in die neunte Harmonische auftritt, wenn auch mit geringerem Umwandlungsgrad als bei Xenon. Die erzeugte neunte Harmonische steigt - wie bei Xenon - mit der dritten Potenz der Pumpenergie (Abb. 19, Seite 52). Interessante Ergebnisse zeitigt die Druckabhängigkeit (Abbildung 17, Seite 50). Während bei Xenon eine Sättigung bei etwa 12 hPa beobachtet wird, ergibt sich bei Argon ein monotoner Anstieg bis etwa 100 hPa, wozu bei noch weiterer Erhöhung des Drucks ein dielektrischer Durchbruch auftritt. Wie ein Vergleich mit der in Abb. 17 (Seite 50) eingezeichneten Geraden zeigt, folgen die Punkte bis etwa 25 hPa ganz gut einem p^3 -Gesetz. Bei einer Gegenüberstellung mit Gleichung (34) deutet dies darauf hin,

daß nur die Abhängigkeit von $\chi^{(3)}$ eine Rolle spielt, dagegen die von der Phasenanpassung stammende Druckabhängigkeit ohne Einfluß ist.

In Abbildung 20 (Seite 56) sind die erzeugten 9ω -Energien für Xenon und Argon zum Vergleich eingezeichnet. Neben der fast drei Größenordnungen höheren Konversion in Xenon erkennt man deutlich das unterschiedliche Sättigungsverhalten der beiden Gase. Über Frequenzkonversion im "verbotenen" Bereich positiver Dispersion wurde auch schon von anderen Autoren /55, 56/ berichtet. Mögliche Mechanismen zur Erklärung des Effekts werden in Abschnitt 4.5 diskutiert.

4.3 Fünfte Harmonische von Jodlaserlicht

($5 \times 3\omega \rightarrow 15\omega$, $\lambda = 87,7 \text{ nm}$)

In Argon, Neon und Helium wurde, ausgehend von der dritten Harmonischen des Jodlasers als Pumpstrahlung, die fünfzehnte Harmonische von Jodlaserlicht bei $\lambda = 87,68 \text{ nm}$ erzeugt. In allen drei Gasen lag positive Dispersion vor. Wie dem Energieniveau-Schema von Neon und Helium (Abbildungen 21 und 22, Seiten 57-58) zu entnehmen ist, liegt das virtuelle Streuniveau in beiden Gasen weit unterhalb des ersten Resonanzniveaus. Bei Argon sind die Dinge etwas komplizierter, weil das Streuniveau gerade zwischen den Energieniveaus $3d [1/2]^{\circ}$ und $3d [3/2]^{\circ}$ sowie $5s [1/2]^{\circ}$ und $5s [3/2]^{\circ}$ liegt (s.Tab.2, S.55 u. Abb.23, S.59). Die Oszillatorstär-

ken der Übergänge dieser Niveaus zum Grundzustand sind jedoch so geartet /50, 53/, daß der Beitrag von $3d [3/2]^{\circ}$ überwiegt. Da sich dieses Niveau 96 Wellenzahlen über dem Streuniveau befindet, liegt somit normale Dispersion vor. Ungeachtet dessen wurde in allen drei Gasen Konversion in 15ω beobachtet, wobei die maximale Konversion in Argon $8 \cdot 10^{-9}$, Neon $4 \cdot 10^{-12}$ und Helium $7 \cdot 10^{-14}$ betrug. Die Abhängigkeit der erzeugten Harmonischen von der Energie der Grundwelle läßt sich in allen drei Gasen gut mit einem Potenzgesetz mit $m = 5$ beschreiben (Abb. 24-26, Seiten 60-62). Bei der Druckabhängigkeit ergibt sich wieder - bis zur Sättigung bei etwa 20 hPa - ein nahezu quadratischer Anstieg (Abb. 27-29, Seiten 63-65), der dem $|\chi^{(5)}|^2$ -Term in Formel (34) entspricht.

Tabelle 2

Übergang	k [1/cm]	λ [nm]	E [eV]	$\Delta\nu$ [1/cm]
$3p^6 \ ^1S - 5s [1/2]^{\circ}$	114975	86,97	14,25	924
$3p^6 \ ^1S - 3d [3/2]^{\circ}$	114147	87,61	14,15	96
15ω	114051	87,68	14,13	
$3p^6 \ ^1S - 5s [3/2]^{\circ}$	113643	87,99	14,09	408
$3p^6 \ ^1S - 3d [1/2]^{\circ}$	111818	89,43	13,86	2233

$\Delta\nu$ = Niveauabstand zur fünfzehnten Harmonischen

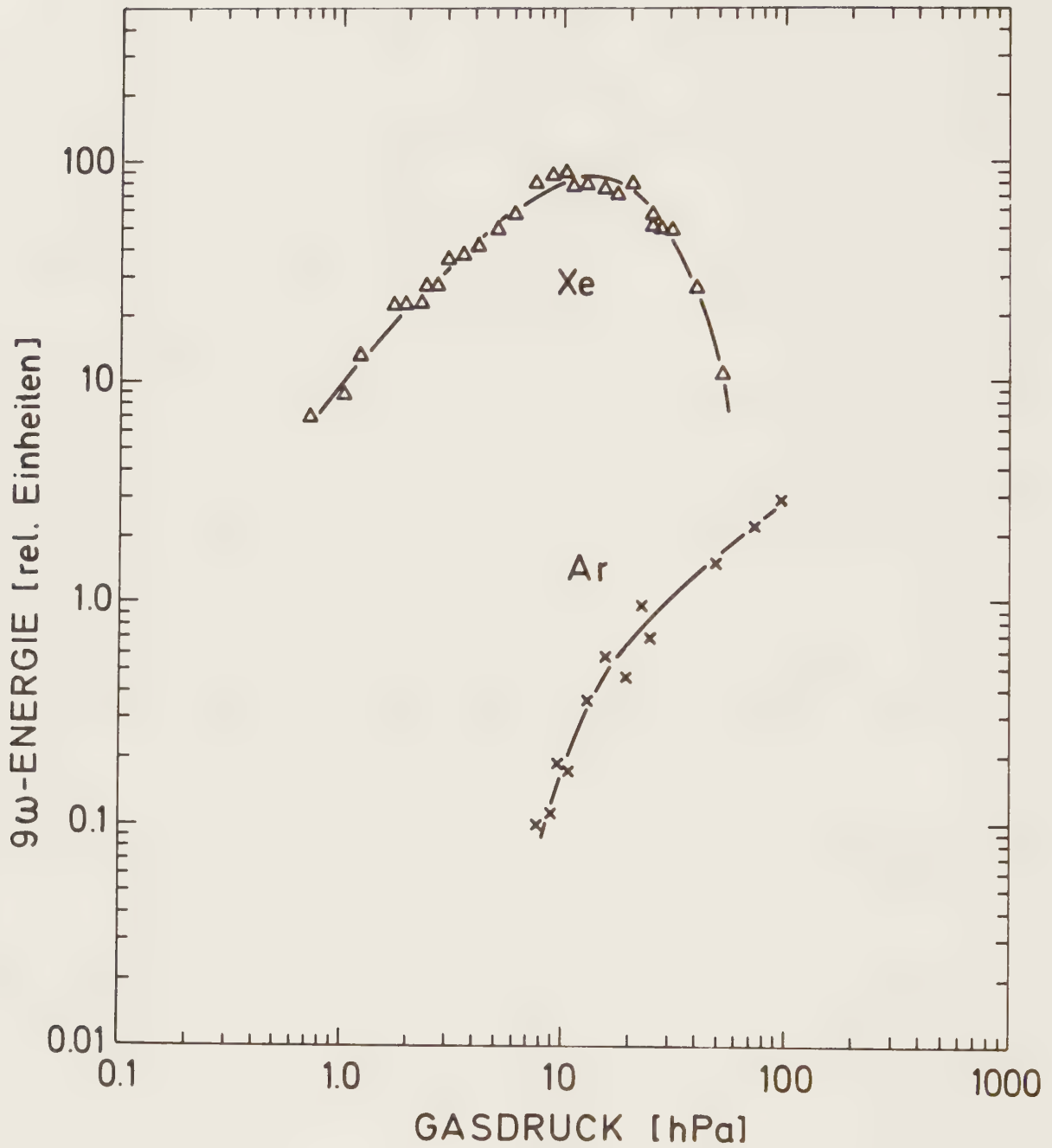


Abb. 20:
Vergleich der Druckabhängigkeit in Xenon und Argon

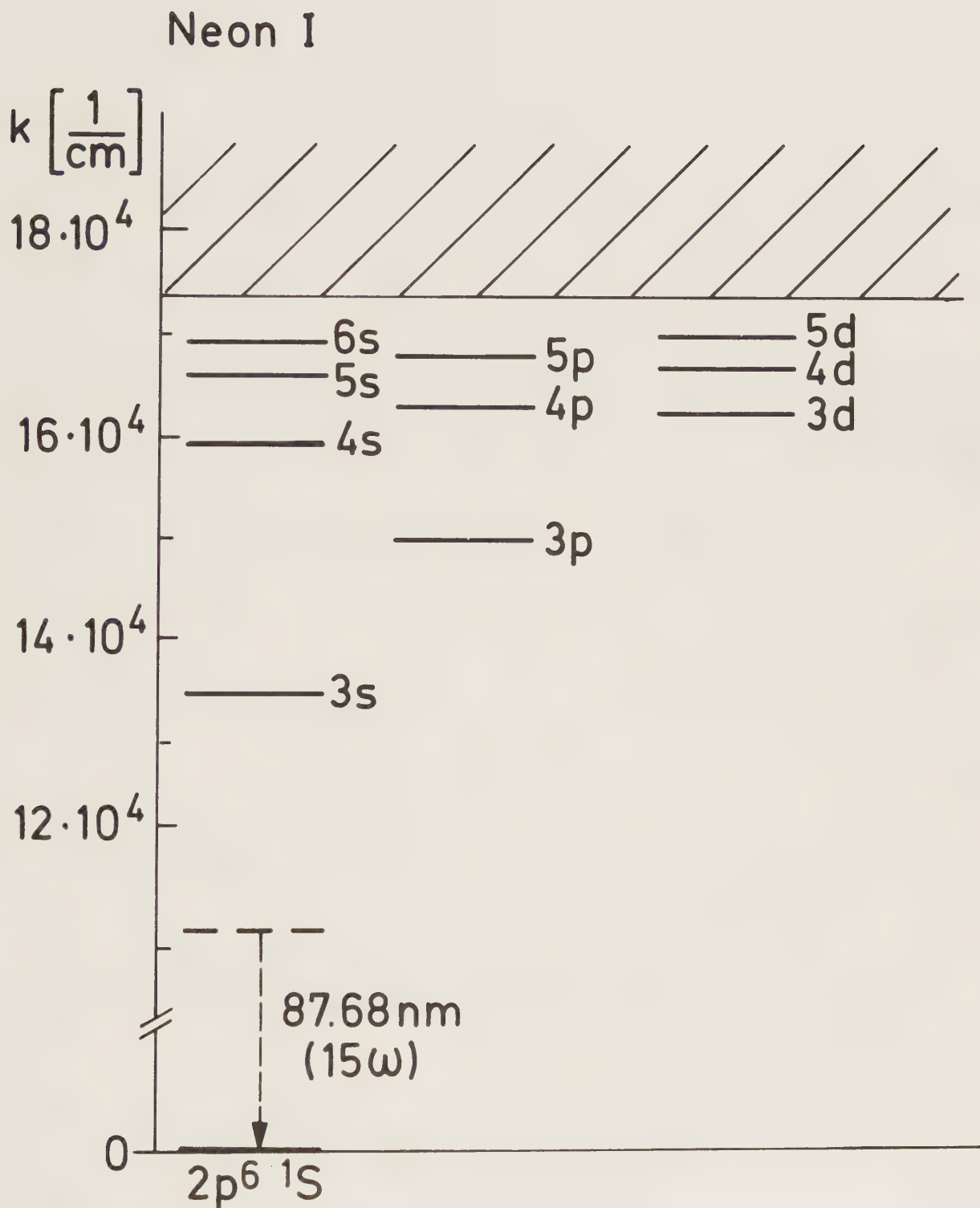


Abb. 21:

Vereinfachtes Energieniveauschema von Neon

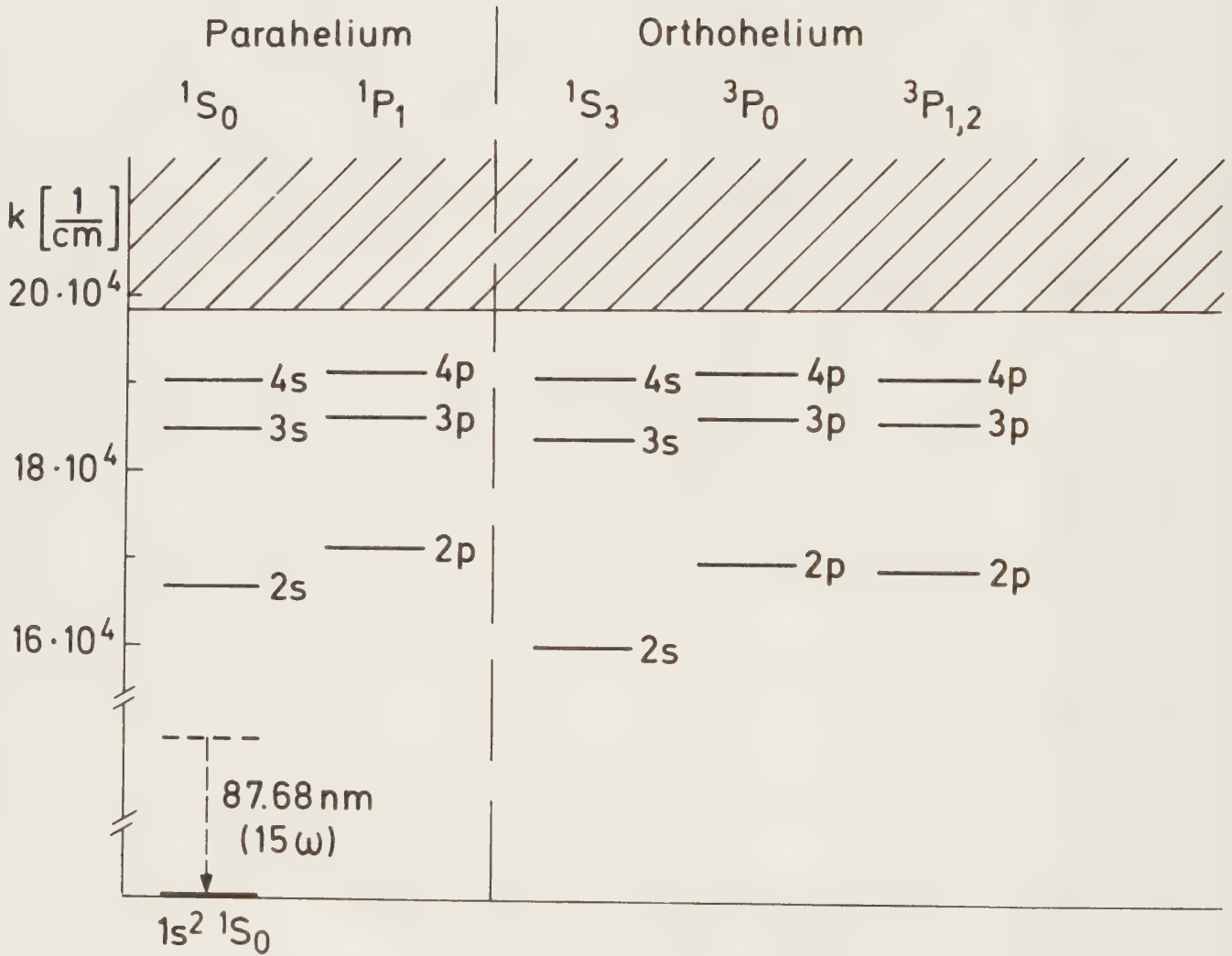


Abb. 22:

Vereinfachtes Energieniveauschema von Helium

Argon I

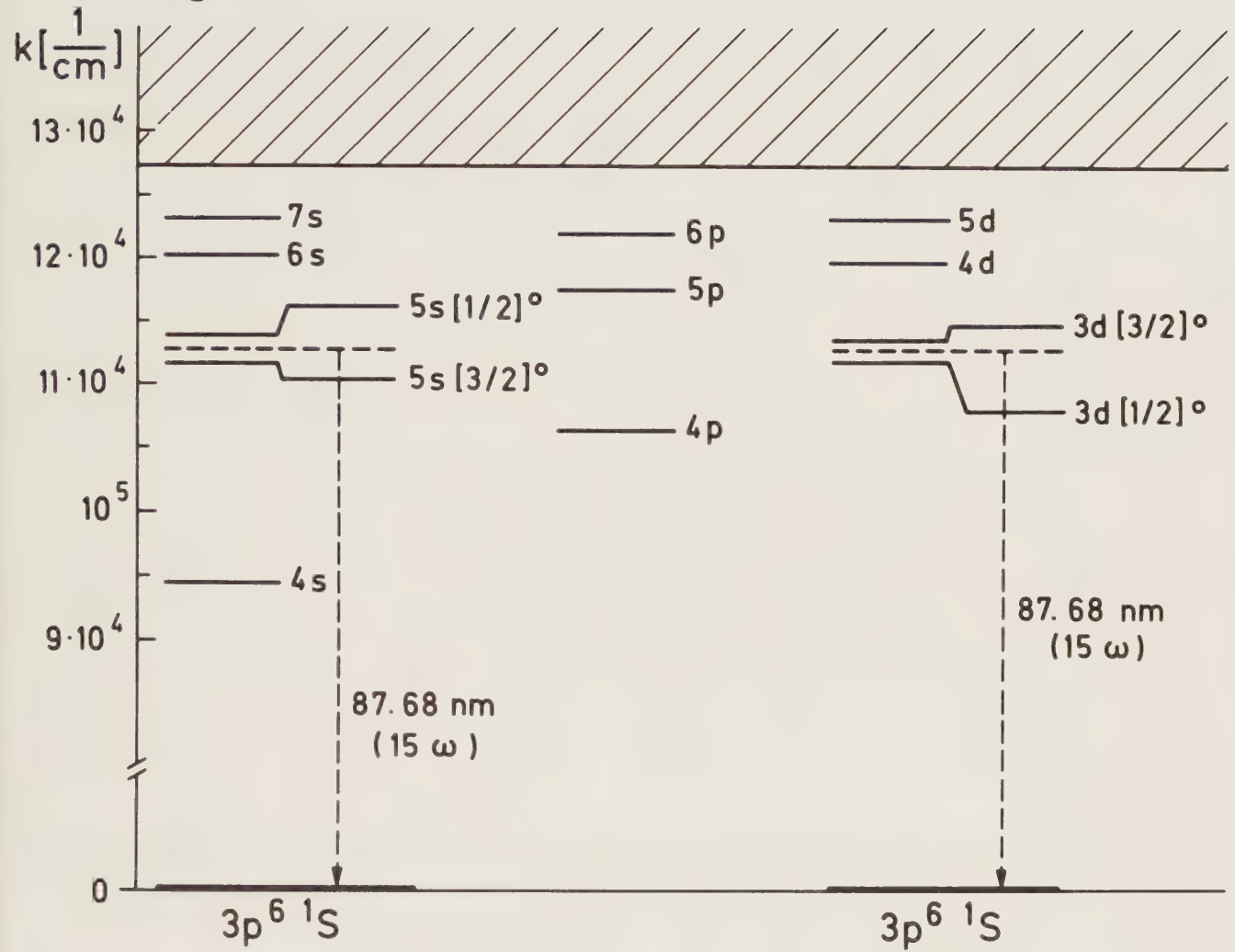


Abb. 23

Vereinfachtes Energieniveauschema von Argon

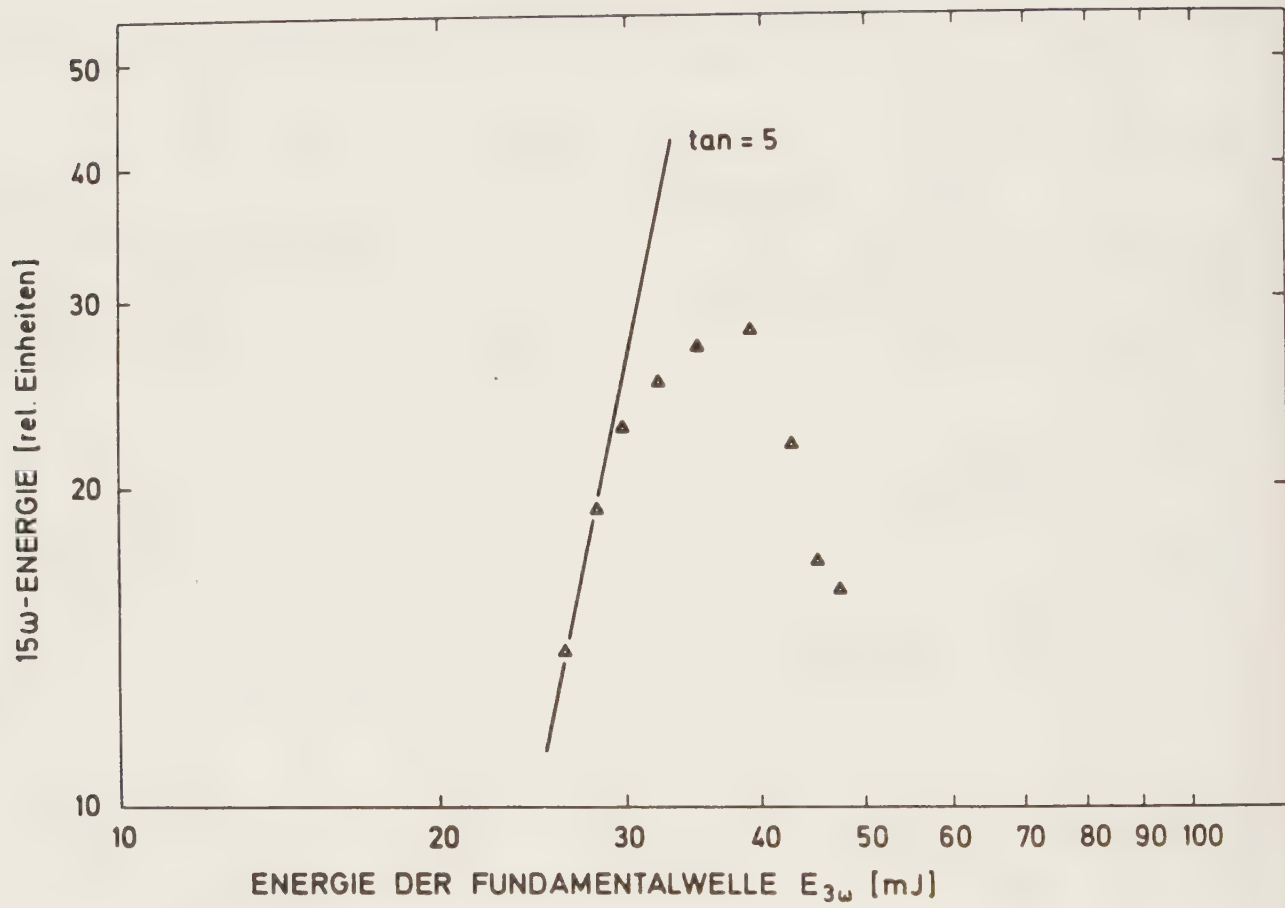


Abb. 24:

Energieabhängigkeit der fünfzehnten Harmonischen in Argon ($p_{Ar} = 25 \text{ hPa}$)

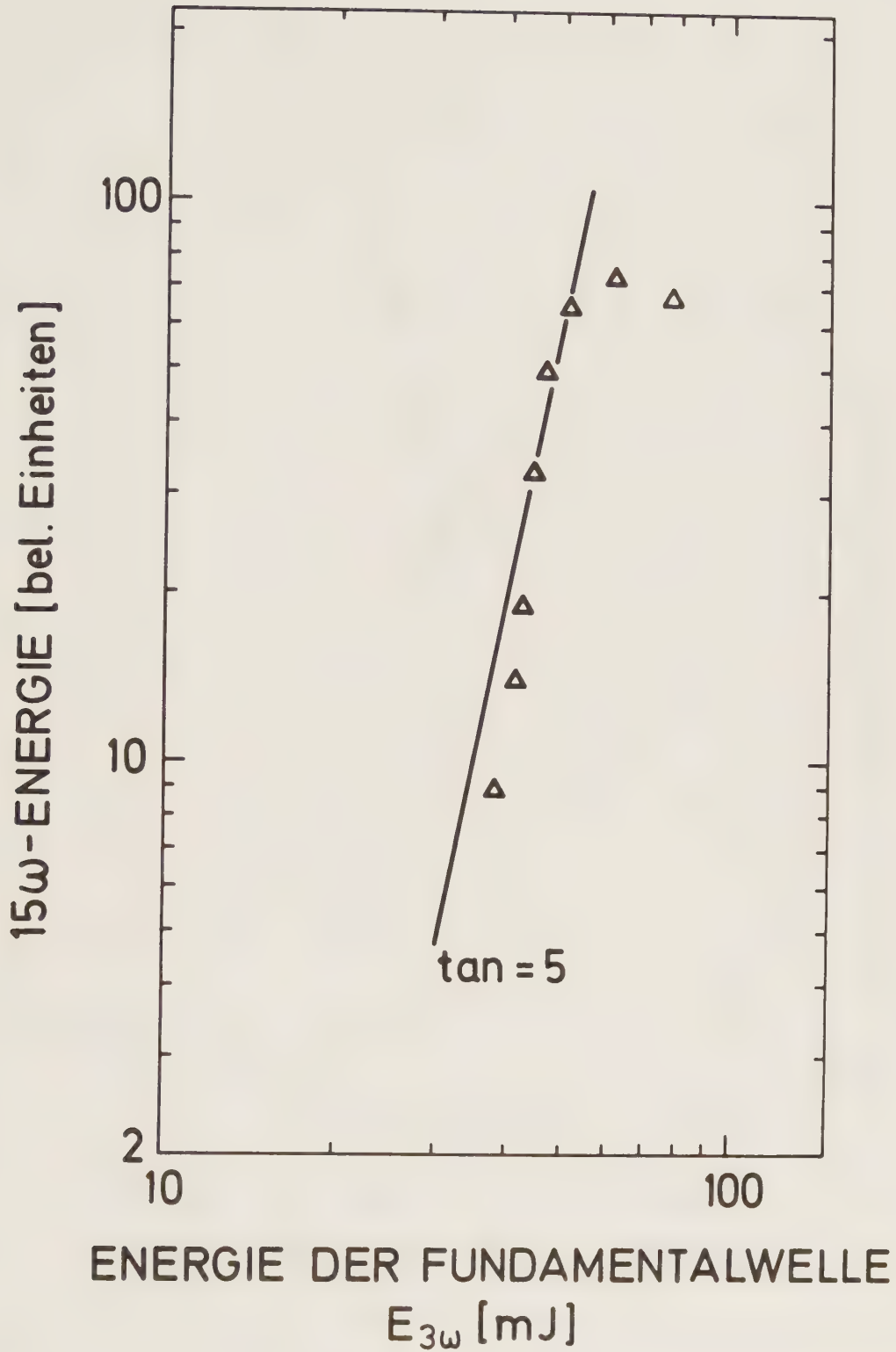


Abb. 25:

Energieabhängigkeit der fünfzehnten Harmonischen in Neon ($p_{\text{Ne}} = 20 \text{ hPa}$)

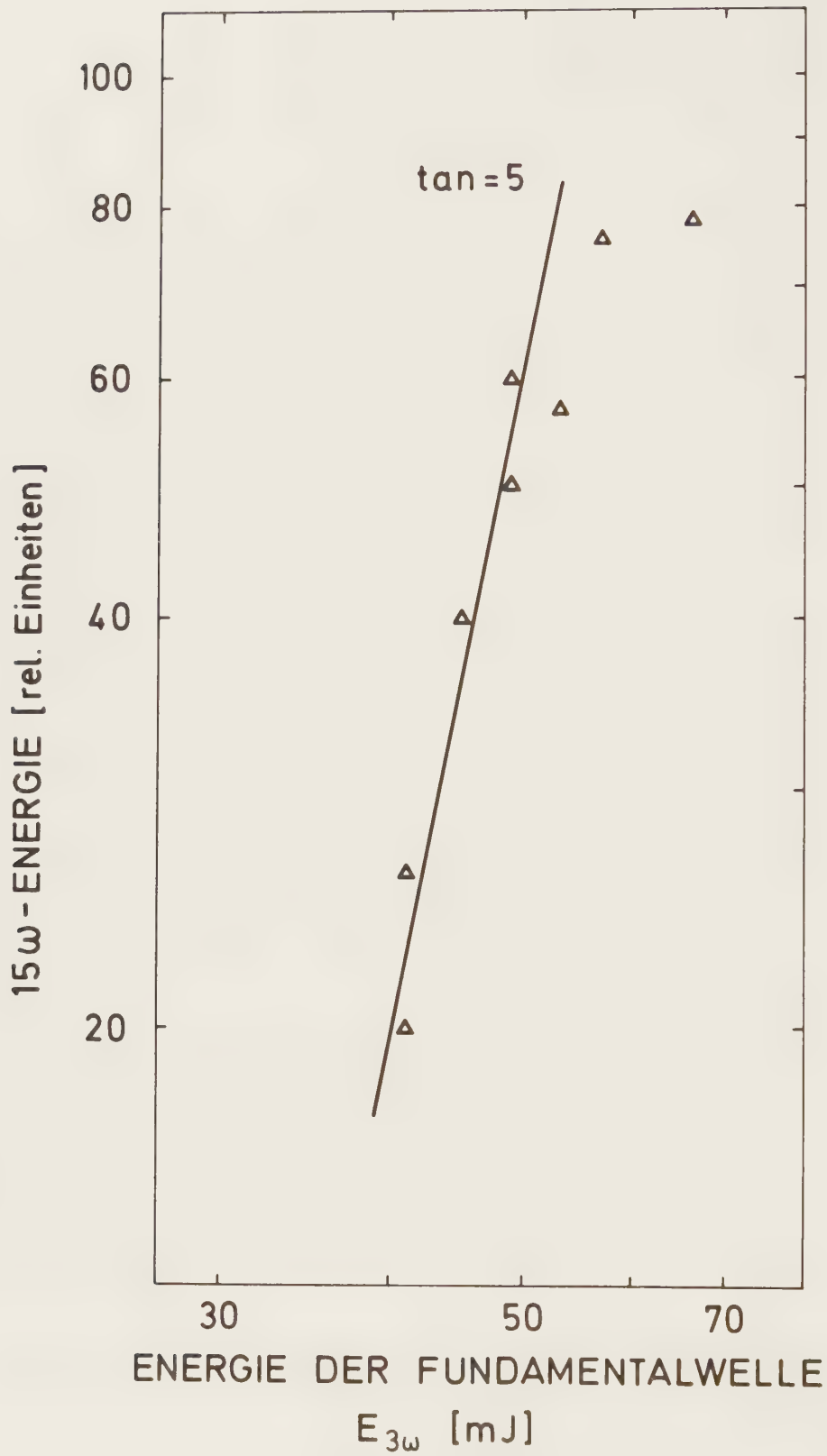


Abb. 26:

Energieabhängigkeit der fünfzehnten Harmonischen in Helium ($p_{\text{He}} = 30 \text{ hPa}$)

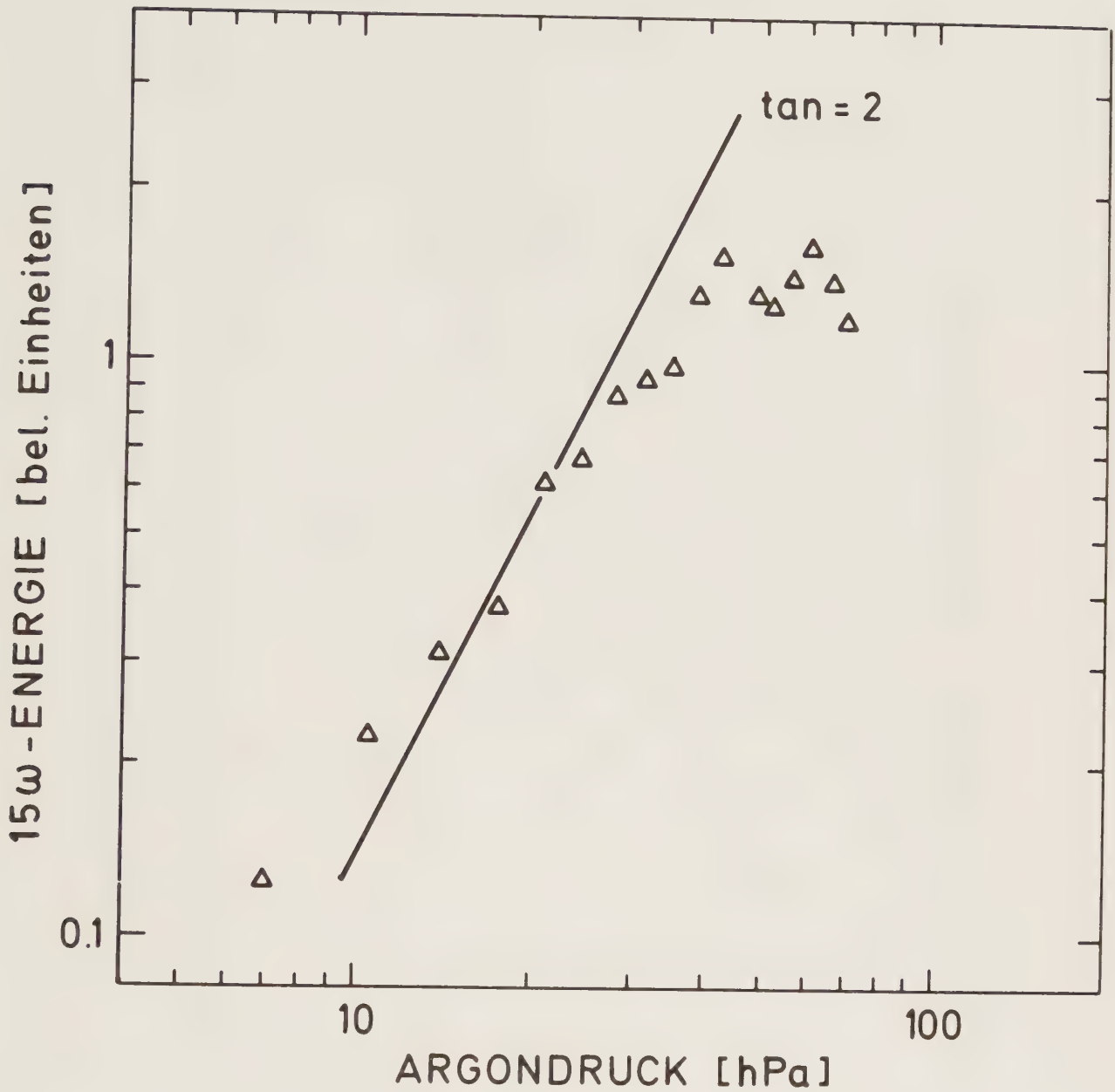


Abb. 27:

Abhängigkeit der fünfzehnten Harmonischen vom Argondruck ($E_p = 50 \text{ mJ}$)

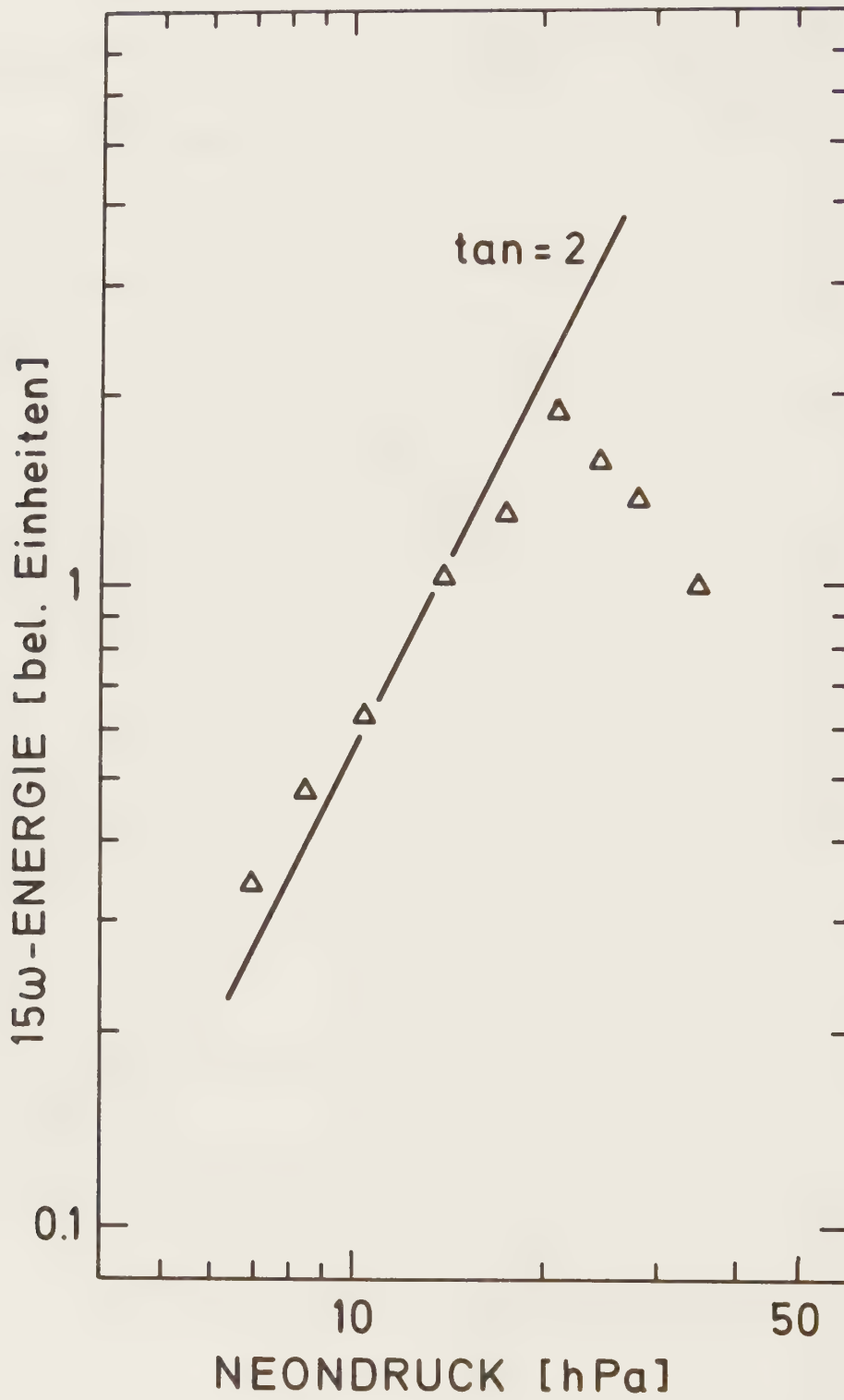


Abb. 28:

Abhängigkeit der fünfzehnten Harmonischen vom Neondruck ($E_p = 60 \text{ mJ}$)

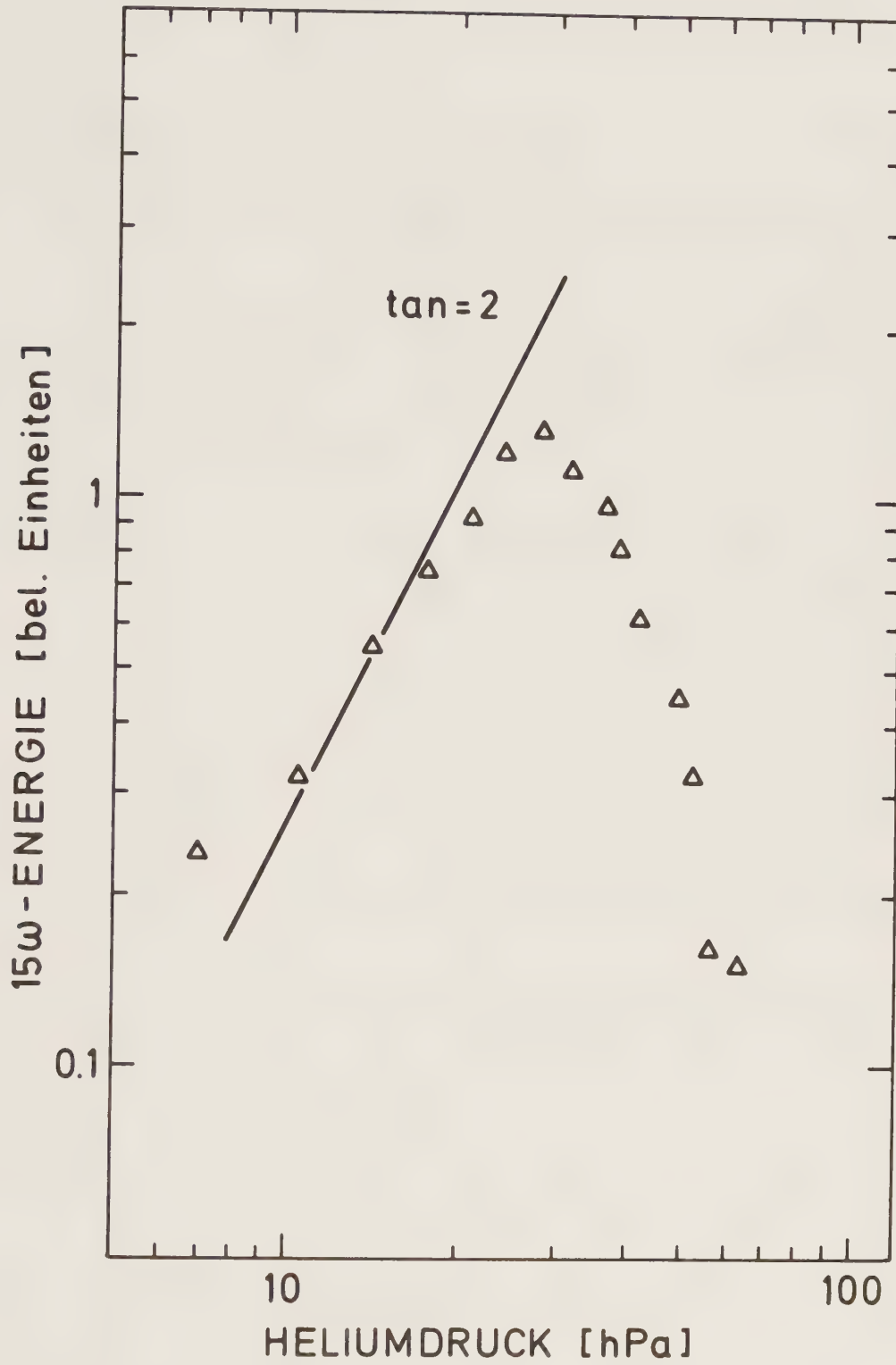


Abb. 29:
Abhängigkeit der fünfzehnten Harmonischen
vom Heliumdruck ($E_p = 60\text{mJ}$)

4.4 Direkt erzeugte neunte und elfte Harmonische aus Jodlaserlicht

Wenn auch VUV- und XUV-Licht mit um so günstigerem Konversionsgrad erzeugt wird, je kurzwelliger die Pumpstrahlung ist, so war es doch von Interesse zu untersuchen, ob Jodlaserpulse vom nahen Infrarot direkt in VUV-Pulse umgewandelt werden können. Deswegen wurden die (in Abb. 5 - Seite 32 - eingezeichneten) KD*P-Kristalle entfernt und die Jodlaserpulse direkt in das Spektrometer fokussiert.

Es gelang, in Xenon die neunte und die elfte Harmonische ($\lambda = 146,1 \text{ nm}$ und $119,6 \text{ nm}$), wenn auch mit niedrigem Wirkungsgrad, zu erzeugen. Die elfte Harmonische ($\lambda = 119,6 \text{ nm}$) ist - soweit bekannt - die höchste Ordnung einer kohärenten Frequenzkonversion, die bisher beobachtet wurde. Vorher hatten nur Grozeva u.a. /72/ die neunte Harmonische von Nd-Glas-Laserlicht ($\lambda = 117,7 \text{ nm}$) beobachtet.*

Die Erzeugung der neunten Harmonischen fand in Xenon bei negativer Dispersion statt, die der elften bei positiver Dispersion (s.Abb.30, Seite 67). Hierbei betrugen die maximalen Umwandlungswirkungsgrade $4 \cdot 10^{-11}$ für 9ω und $6 \cdot 10^{-12}$ für 11ω .

* In lasererzeugten Plasmen wurden jedoch wesentlich höhere Harmonische (bis zur 46. Harmonischen) beobachtet /59, 60/. Es handelt sich hier jedoch um inkohärente Emission in den gesamten Raumwinkel 4π .

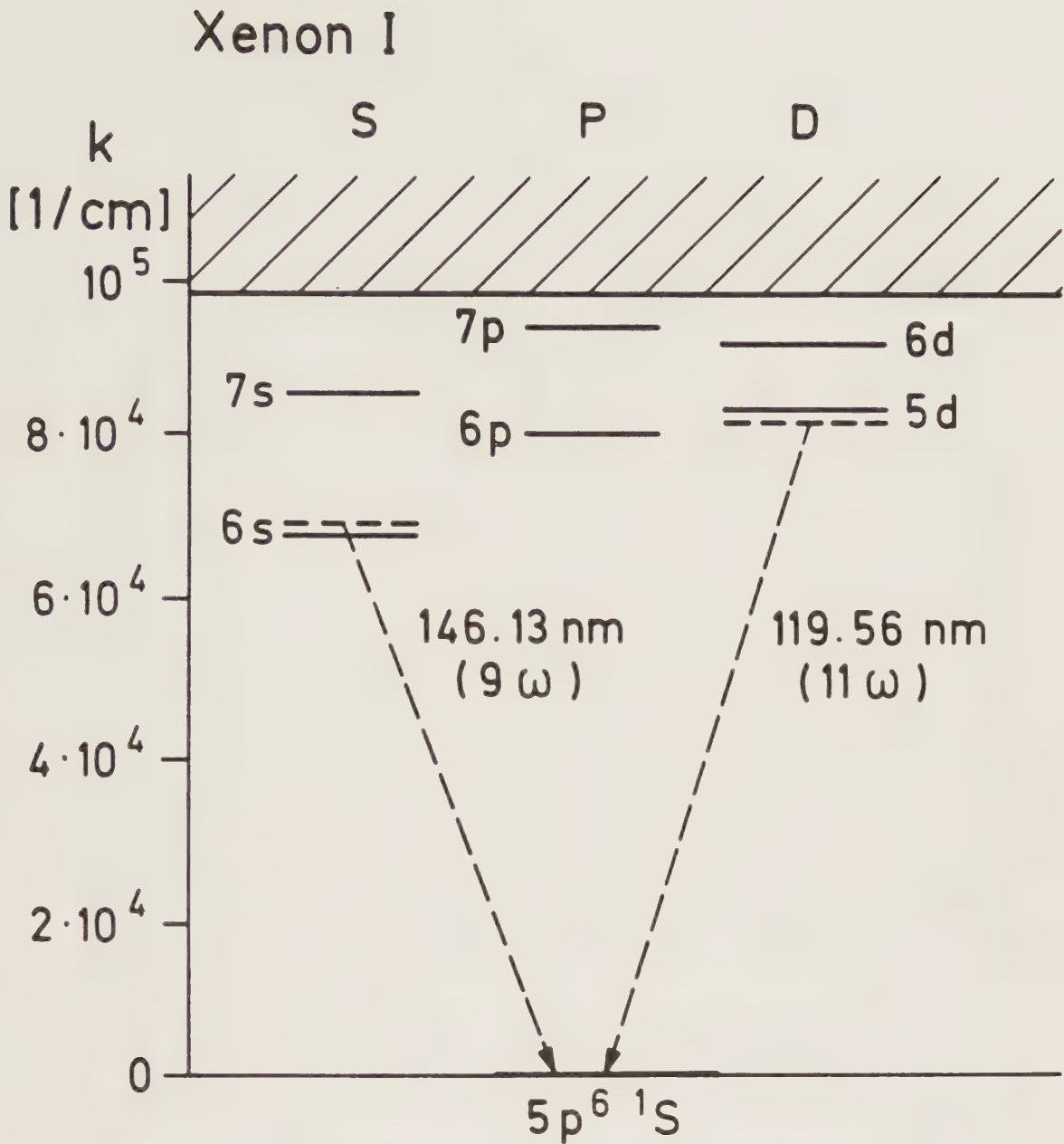


Abb. 30:

Vereinfachtes Energieniveauschema von Xenon

Bei Variieren der Pumpenergie trat sowohl die erzeugte neunte als auch die elfte Harmonische infolge ihrer hohen Ordnung außergewöhnlich plötzlich auf, was beinahe einem Schwellenverhalten entspricht (Abb. 31 und 32, Seiten 68-69).

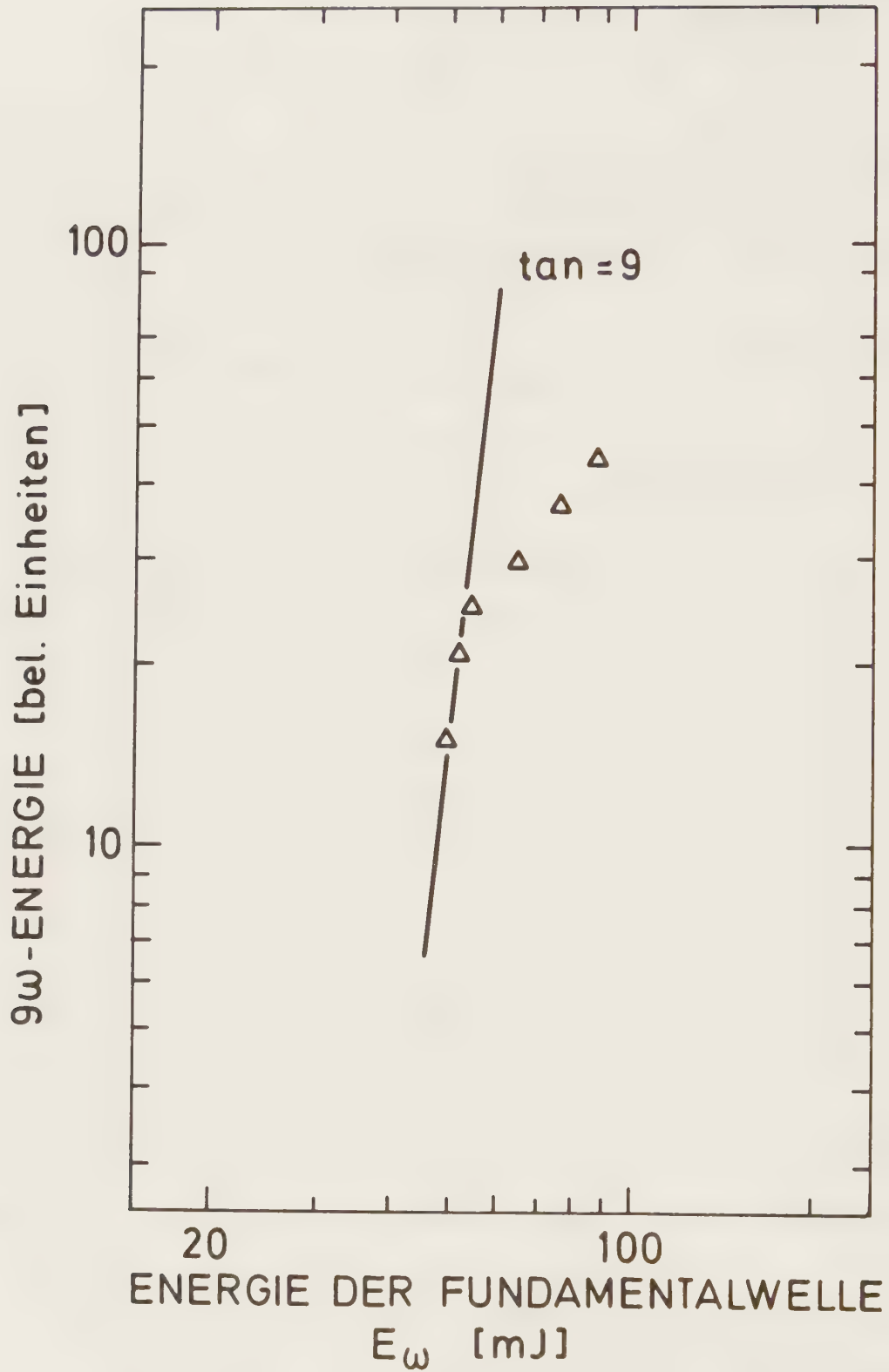


Abb. 31:

Energieabhängigkeit der direkt erzeugten neunten Harmonischen ($p_{x_e} = 40 \text{ hPa}$)

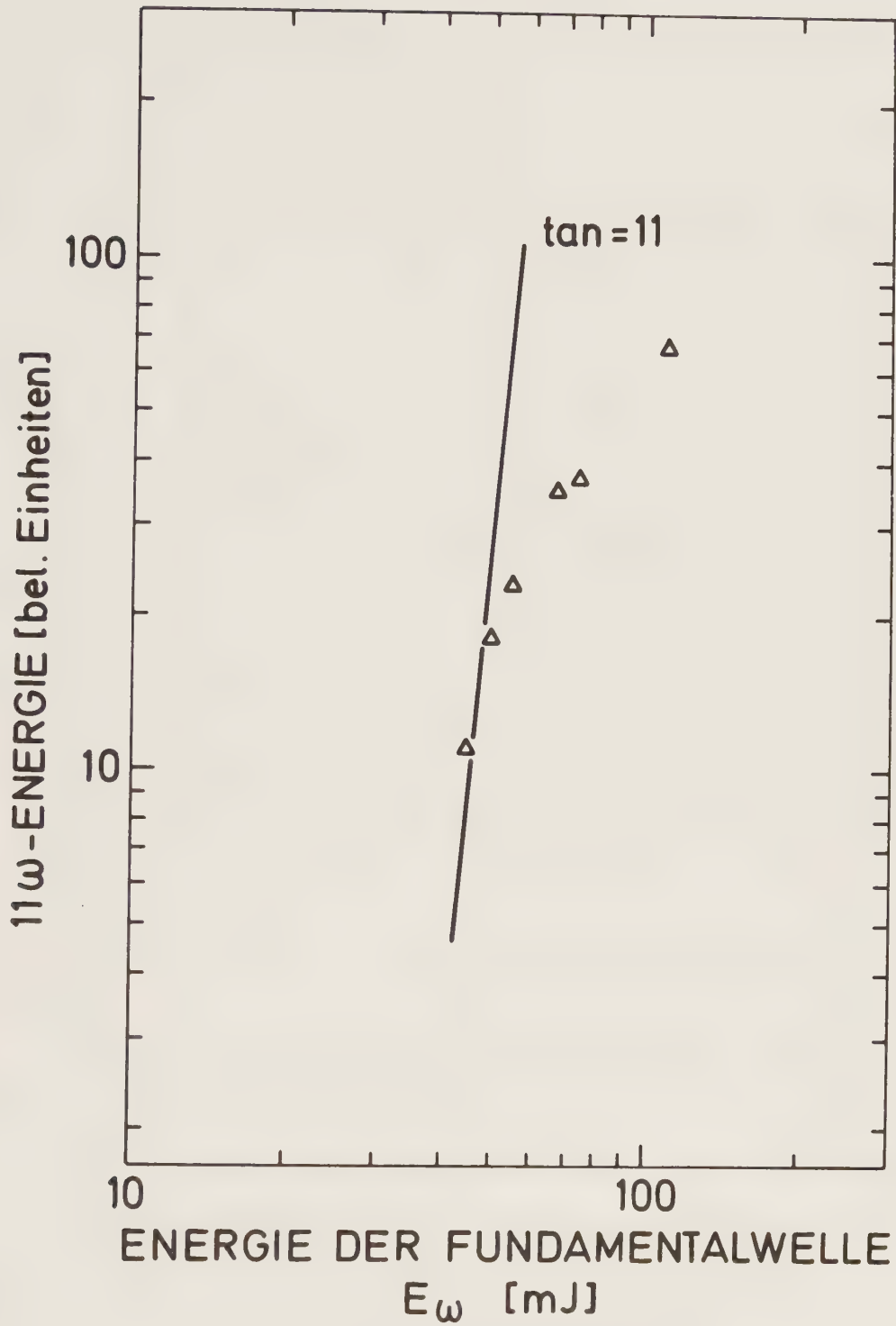


Abb. 32:

Energieabhängigkeit der direkt erzeugten elften Harmonischen ($p_{\chi_e} = 60 \text{ hPa}$)

Wie in Kapitel 4.2 gezeigt, läßt sich der theoretische Verlauf der direkt erzeugten neunten Harmonischen in Abhängigkeit vom Druck aus Gleichung (34) berechnen, was in Abb. 36 (Seite 79) mit (Abb. 36c,d) und ohne (Abb. 36a,b) Berücksichtigung des nichtlinearen Brechungsindex eingetragen ist (siehe Abschnitt 4.5).

Bei 11 ω ist kein Vergleich mit einer theoretischen Kurve möglich, da nach der Theorie bei positiver Dispersion kein frequenzkonvertiertes Licht vorkommen sollte. Es zeigt sich jedoch, daß die Meßpunkte gut einer quadratischen Abhängigkeit vom Druck folgen (Abb. 34, Seite 72). Dies deutet darauf hin, daß der quadratische Anstieg, der aus dem $|\chi^{(11)}|^2$ -Term stammt, sich auswirkt. Dagegen tritt kein Mechanismus auf, der aus der Phasenanpassung hervorgeht.

4.5 Diskussion der Ergebnisse

Die in den vorhergehenden Abschnitten beschriebenen Messungen können nur zum Teil durch die in Abschnitt 2 gegebene Theorie erklärt werden. Gute Übereinstimmung mit den theoretischen Vorhersagen ergibt sich eigentlich nur hinsichtlich der Energieabhängigkeit der m-ten Harmonischen von der Energie der Pumppulse, die bei nicht zu hoher Grundwellenenergie gut durch ein Potenzgesetz mit dem Exponenten m beschrieben wird.

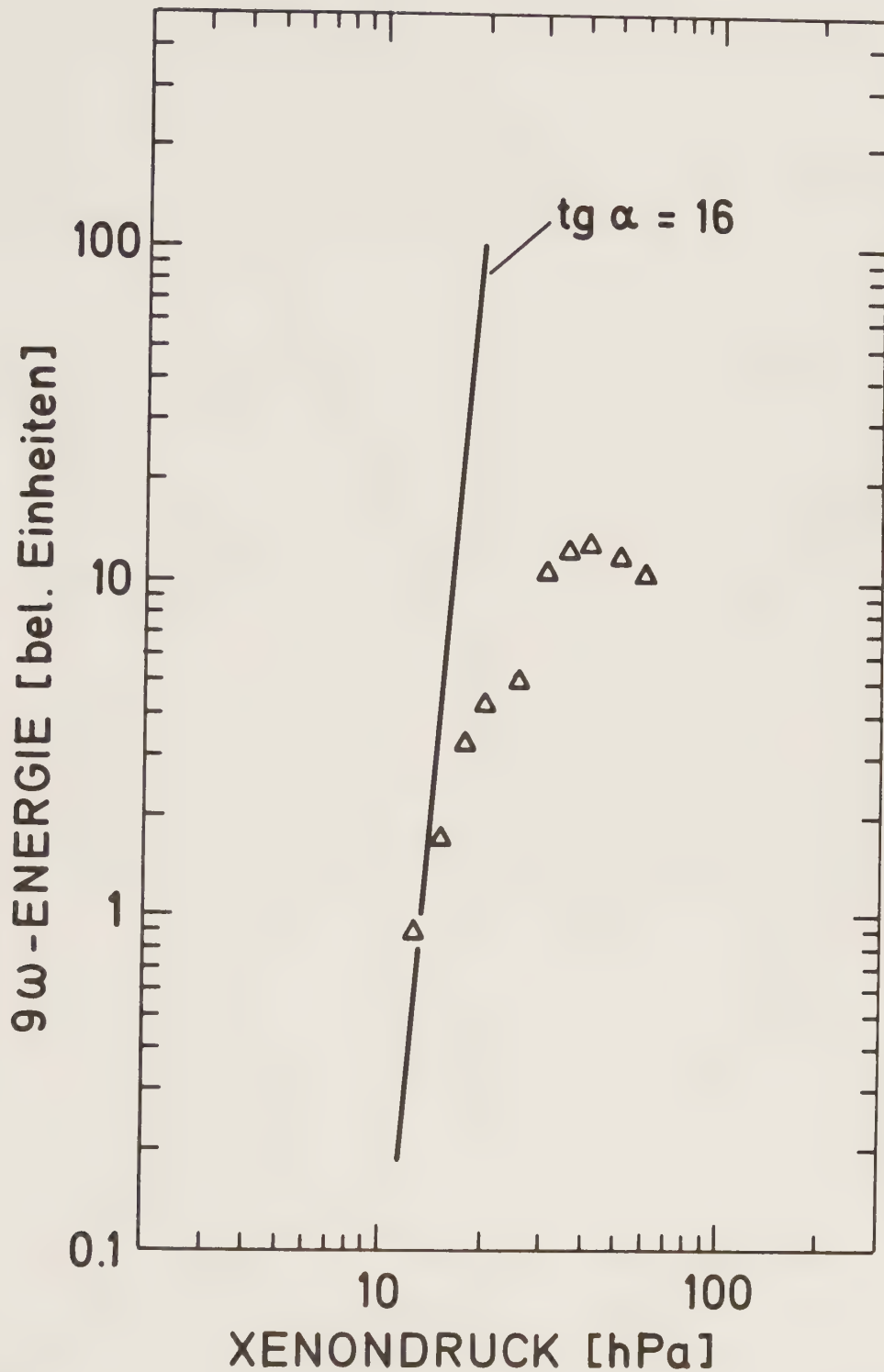


Abb. 33:

Abhängigkeit der direkt erzeugten neunten Harmonischen vom Xenon-
druck ($E_p = 60 \text{ mJ}$)

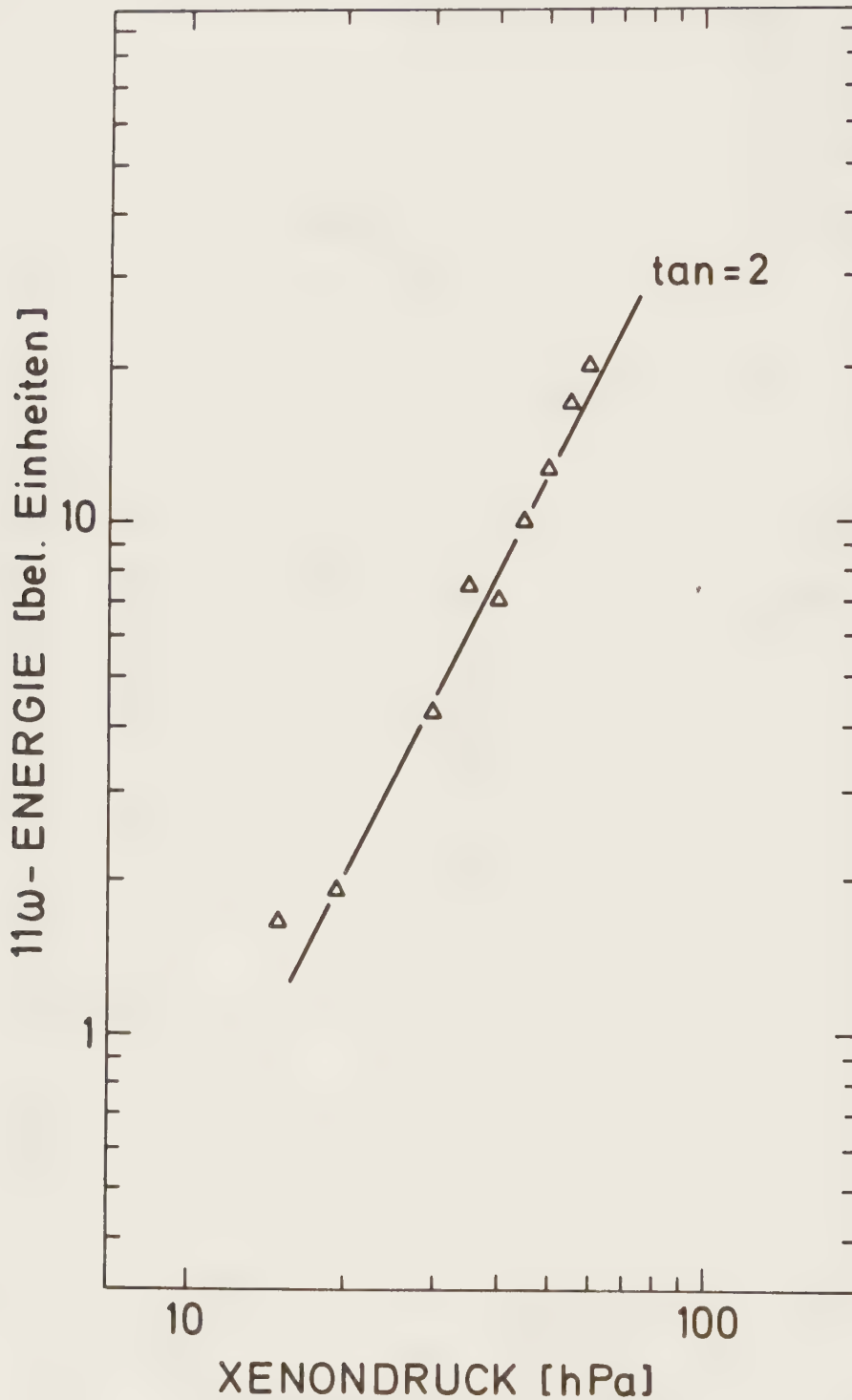


Abb. 34:

Abhängigkeit der direkt erzeugten elften Harmonischen vom Xenondruck ($E_p = 90 \text{ mJ}$)

Abweichungen von der Theorie zeigen sich besonders in der Abnahme der Konversion bei hohen Pumpenergien und auch in der frühen Sättigung der Konversion in Abhängigkeit vom Druck, und zwar weit vor dem durch Gleichung (34) bestimmten Maximum (Abb. 35b).

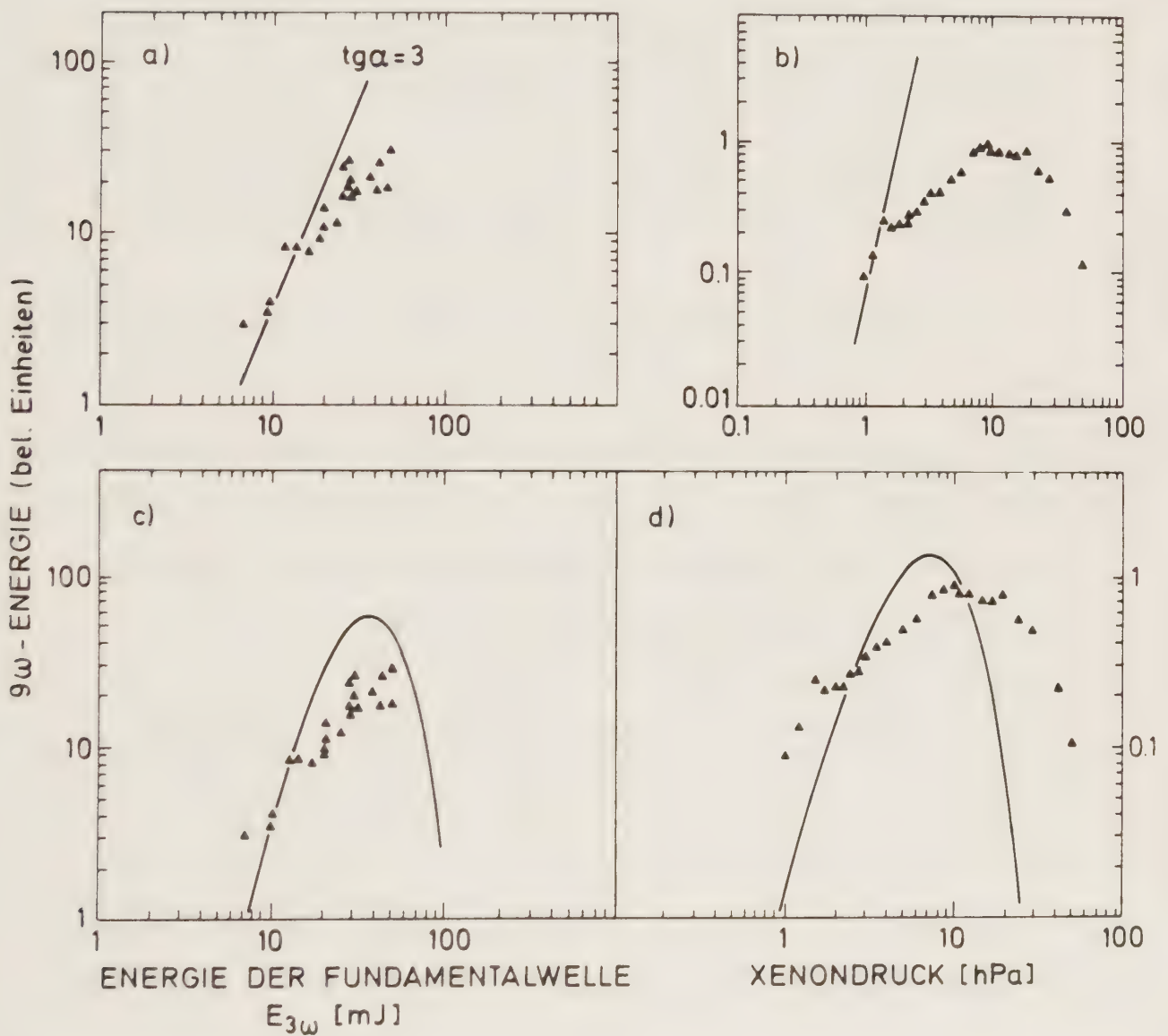


Abb. 35: $3 \times 3\omega \rightarrow 9\omega$

Vergleich theoretischer und experimenteller Werte unter Berücksichtigung des nichtlinearen Brechungsindex

Ungeklärt blieb das Auftreten einer - wenn auch kleinen - Frequenzkonversion im Bereich positiver Dispersion.

Zunächst soll jedoch versucht werden, die Sättigung der energie- und druckabhängigen Konversion im Bereich negativer Dispersion zu erklären. Dieser Effekt ist zu verstehen, wenn die Abhängigkeit des Brechungsindex von der Intensität der Pumpstrahlung im Gebiet der Wechselwirkung berücksichtigt wird /57/.

Bei der Erzeugung von 9ω -Licht aus 3ω -Pumplicht ergibt sich für die erzeugte 9ω -Leistung aus Gleichung (34)

$$P_{9\omega} \sim P_{3\omega}^3 |\chi^{(3)}|^2 (b\Delta k e^{b\Delta k/2})^2 \quad (37)$$

Zur Berechnung der Druckabhängigkeit ist zu berücksichtigen daß sowohl $\chi^{(3)}$ als auch Δk proportional zur Teilchendichte und somit zum Druck sind (Temperatureffekte können vernachlässigt werden), weshalb

$$\begin{aligned} \chi^{(3)} &= \bar{\chi} \cdot p \quad \text{und} \quad \Delta k = k_{9\omega} - 3k_{3\omega} = \frac{2\pi}{\lambda_{9\omega}} (n_{9\omega} - n_{3\omega}) = \\ &= \overline{\Delta k} \cdot p \quad (38) \end{aligned}$$

gilt, wobei $\bar{\chi}$ und $\overline{\Delta k} < 0$ die Suszeptibilität und Wellenvektordifferenz pro hPa sind.

Sonach ergibt sich in Abhängigkeit vom Druck

$$P_{9\omega} \sim p^4 e^{b\overline{\Delta k} p} \quad (39)$$

Diese Funktion steigt für kleine p zunächst mit der vierten Potenz an und erreicht ihr Maximum bei $p_{\max} = 4/|b\overline{\Delta k}|$. Der konfokale Parameter b folgt aus der Fokussierungsgeometrie zu

$$b = 2/\pi \cdot f^2/w_0^2 \cdot \lambda_{3\omega} , \quad (40)$$

wobei die Brennweite der Fokussierungslinse durch f und der Radius des Strahls an der Linse durch w_0 gekennzeichnet ist.

Mit $f = 37 \text{ mm}$ und $w_0 = 3 \text{ mm}$ erhält man für $b = 42 \text{ }\mu\text{m}$.

Aus dem Brechungsindex von Xenon /58/ kann $\overline{\Delta k}$ errechnet werden. Dabei ergibt sich für $\overline{\Delta k} = 1,737 \cdot p[\text{cm}^{-1} \cdot \text{hPa}^{-1}]$.

Maximale Konversion tritt bei einem Druck von $p_{\max} = 250 \text{ hPa}$ auf. Ein Vergleich mit den Meßpunkten (Abb. 34 b ,S.73) zeigt, daß das experimentelle Maximum schon bei dem viel kleineren Druck von etwa 10 hPa erreicht wird. Die theoretische Kurve enthält einen freien, sich aus dem Proportionalitätsfaktor in Gleichung (39) ergebenden Parameter, der eine Verschiebung der Kurve in vertikaler Richtung bewirkt. Eine Anpassung an die Meßpunkte liefert die Gerade in Abb.35b (Seite 73). Zu sehen ist nur der mit etwa p^4 ansteigende linke Ast der Kurve, deren Maximum weit außerhalb des Diagramms fällt.

Das frühe Zusammenbrechen der druck- und die Sättigung der energieabhängigen Konversion erklärt sich aus der Abhängigkeit des Brechungsindex von der Intensität der Pumpstrahlung /59/. Wird der nichtlineare Brechungsindex durch

$$n_{n\ell}(3\omega) = n_{\ell}(3\omega) + n_2(3\omega, 3\omega) I_{3\omega} \quad (41)$$

und

$$n_{n\ell}(9\omega) = n_{\ell}(9\omega) + n_2(9\omega, 3\omega) I_{3\omega} \quad (42)$$

dargestellt, so lautet die Wellenvektordifferenz

$$\Delta k = 2\pi/\lambda_{9\omega} \cdot [\Delta n_{\ell} + \Delta n_2 I_{3\omega}] \quad (43)$$

$$\Delta n_{\ell} = n_{\ell}(9\omega) - n_{\ell}(3\omega) \quad (44)$$

und

$$\Delta n_2 = n_2(9\omega, 3\omega) - n_2(3\omega, 3\omega) \quad (45)$$

drücken die Differenzen der Brechungsindices aus.

Da sowohl Δn_{ℓ} als auch Δn_2 proportional zum Druck sind, läßt sich die intensitätsabhängige Wellenvektordifferenz so schreiben:

$$\Delta k_{\text{ges}} = [\overline{\Delta k_{\ell}} + \overline{\Delta k_{n\ell}} I_{3\omega}] \cdot p \quad (46)$$

Setzt man

$$I_{3\omega} = P_{3\omega}/A, \quad (47)$$

wobei A die Querschnittsfläche der Wechselwirkungszone (im Brennpunkt der Fokussierungslinse) bezeichnet, so ergibt sich für die erzeugte 9ω -Leistung

$$P_{9\omega} \sim P_{3\omega}^3 p^4 (\overline{\Delta k}_\ell + \overline{\Delta k}_{nl} P_{3\omega}/A)^2 \exp(b[\overline{\Delta k}_\ell + \overline{\Delta k}_{nl} P_{3\omega}/A]p). \quad (48)$$

Der nichtlineare Brechungsindex $n_2(3\omega, 3\omega)$ von Xenon kann der Literatur entnommen werden /61/. Das $n_2(9\omega, 3\omega)$, welches den Einfluß des Pumplichts bei 3ω auf den Brechungsindex bei 9ω wiedergibt, ist jedoch nicht bekannt. Deshalb wird in Gleichung (48) die nichtlineare Wellenvektordifferenz $\overline{\Delta k}_{nl}$ als freier Parameter behandelt und versucht, die theoretische Kurve (Gl. 48) an die Meßpunkte der energie- und druckabhängigen Konversion anzupassen (wozu natürlich dasselbe $\overline{\Delta k}_{nl}$ für beide Kurven verwendet werden muß). Wieweit eine Anpassung möglich ist, zeigen die Kurven in Abb. 35c und d (Seite 73). Aus dem Wert für $\overline{\Delta k}_{nl}$ ergibt sich die Differenz der nichtlinearen Brechungsindices

$$\Delta n_2 = 1,3 \cdot 10^{-16} \cdot p \text{ [cm}^2/\text{Watt]}$$

In der Literatur findet sich ein Wert für $n_2(3\omega, 3\omega)$ bei 30 hPa /61/

$$n_2(3\omega, 3\omega) = 10^{-16} \text{ [cm}^2/\text{Watt]}$$

Daraus folgt, daß der Hauptbeitrag für das $\overline{\Delta n}_2$ aus dem $n_2(9\omega, 3\omega)$ stammt.

Im ganzen gesehen, läßt sich durch die phänomenologische Einführung eines intensitätsabhängigen Brechungsindex der ungefähre Verlauf und die Lage der Maxima der energie- und druckabhängigen Konversionskurve approximieren.

Ähnlich kann man auch bei der direkten Erzeugung von 9ω in Xenon verfahren. Aus den Gleichungen (34) und (35) berechnet sich die erzeugte 9ω -Leistung:

$$P_{9\omega} \sim P_{1\omega}^9 P^{16} |\overline{\Delta k}_\ell + \overline{\Delta k}_{n\ell} P_\omega/A|^{14} \cdot \exp(b[\overline{\Delta k}_\ell + \overline{\Delta k}_{n\ell} P_\omega/A] p) \quad (49)$$

mit

$$\overline{\Delta k}_\ell \cdot p = \frac{2\pi}{\lambda_{9\omega}} (n_\ell(9\omega) - n_\ell(\omega)) \quad (50)$$

und

$$\overline{\Delta k}_{n\ell} \cdot p = \frac{2\pi}{\lambda_{9\omega}} (n_2(9\omega, \omega) - n_2(\omega, \omega)) \quad (51)$$

Bei $\overline{\Delta k}_{n\ell}$ als frei wählbarem Parameter zeigen sich die in Abb. 36c und d (Seite 79) dargestellten Kurven. Der erhaltene Wert liefert

$$\Delta n_2 = 1,1 \cdot 10^{-16} \cdot p \text{ [cm}^2/\text{Watt]}$$

Durch die Einführung eines intensitätsabhängigen Brechungsindex läßt sich die Sättigung der energie- und druckabhängigen Konversionskurven bei negativer Dispersion zumindest qualitativ verstehen.

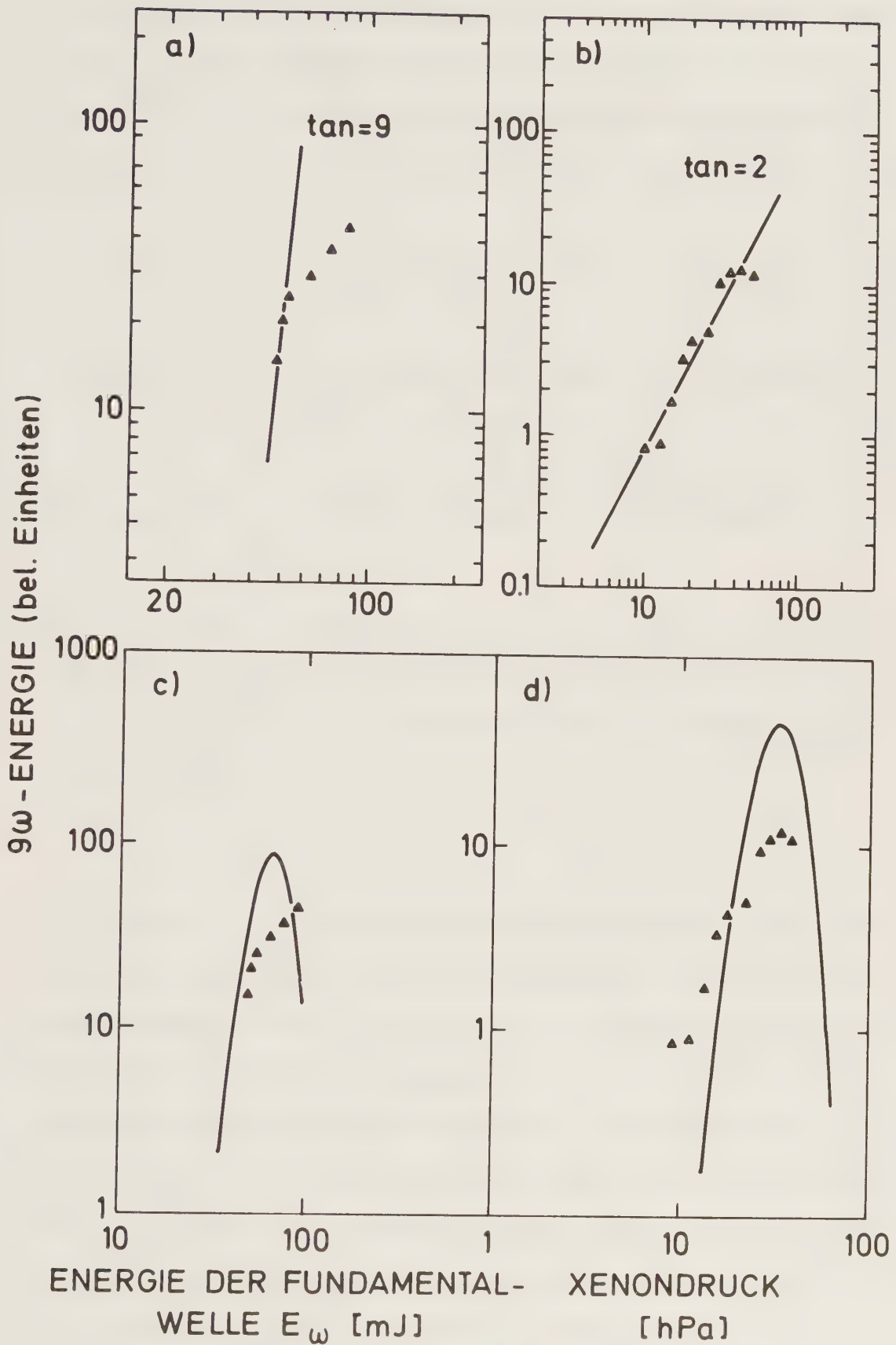


Abb. 36: $9 \times 1\omega \rightarrow 9\omega$

Vergleich theoretischer und experimenteller Werte unter Berücksichtigung des nichtlinearen Brechungsindex

Kann derselbe Effekt auch zur Erklärung der Frequenzkonversion im normalen Dispersionsbereich ($\overline{\Delta k}_\ell > 0$) herangezogen werden? Tatsächlich zeigt sich, daß $\overline{\Delta k}_{n\ell} < 0$ ist, wenn bei der Wechselwirkung $3 \times 3\omega \rightarrow 9\omega$

$$n_2(3\omega, 3\omega) > n_2(9\omega, 3\omega)$$

wird. Somit ist ab einer bestimmten Schwellenintensität $I_{3\omega}^S$

$$\Delta k_{\text{ges}} = [\overline{\Delta k}_\ell + \overline{\Delta k}_{n\ell} I_{3\omega}] p < 0 \text{ für } I_{3\omega} > I_{3\omega}^S. \quad (52)$$

Keinesfalls kann $P_{9\omega}$ als Funktion von $P_{3\omega}$ durch ein Potenzgesetz mit dem Exponenten 3 beschrieben werden. Sie ist vielmehr durch eine Schwelle bei

$$P_{3\omega}^S = I_{3\omega}^S \cdot A \quad (53)$$

gekennzeichnet und steigt steiler als $P_{3\omega}^3$ an. Analog sollte sich bei der Druckabhängigkeit keine quadratische Abhängigkeit, sondern für ($P_{3\omega} > P_{3\omega}^S$) nach Gleichung (39) ein Ansteigen mit p^4 bei kleineren Druckwerten zeigen. (Bei hohen Drücken erfolgt auch hier zunächst wieder ein Abflachen und schließlich eine Abnahme der Konversion mit steigendem p). Für die Wechselwirkung $5 \times 3\omega \rightarrow 15\omega$ und $11 \times 1\omega \rightarrow 11\omega$ gilt Ähnliches. Somit zeichnet sich am Ende die etwas enttäuschende Schlußfolgerung ab, daß die

beobachtete Erzeugung Harmonischer im Bereich normaler Dispersion, zumindest für die vorliegenden Experimente, nicht durch einen intensitätsabhängigen Brechungsindex erklärt werden kann.

Auch von anderen Autoren ist Frequenzkonversion bei $\Delta k > 0$ mitgeteilt worden /62, 63/, doch meist ohne den Versuch einer Deutung. In einer Arbeit von Reintjes u.a. /63/ wird der Effekt etwas vage mit Selbstfokussierung im Gebiet hoher Pumpintensität in Zusammenhang gebracht. Jedoch kann auch dies nicht als zufriedenstellende Erklärung angesehen werden.

Es soll nicht unerwähnt bleiben, daß die Theorie eine Erzeugung Harmonischer für $\Delta k > 0$ erlaubt, wenn ein "semiinfinites" Medium vorliegt (das Integral in Gleichung (32) geht dann von 0 bis ∞ und ergibt auch für $\Delta k > 0$ einen Wert ungleich Null), das heißt, wenn sich der Fokus genau am Rande des Mediums befindet. Experimentell ist ein solches semiinfinites Medium mit der Methode des differentiellen Pumpens realisierbar. Doch ist damit die hier aufgetretene Erzeugung Harmonischer bei $\Delta k > 0$ nicht geklärt, denn der Brennpunkt der Pumpstrahlung befand sich sowohl bei den Experimenten mit der Zelle als auch bei denen mit der Düse immer in der Mitte des Mediums. Deshalb sind die Voraussetzungen, welche die Theorie bei semiinfiniten Medien fordert, nicht gegeben.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß sich zwar eine Reihe von Gründen angeben läßt, weshalb die in Kapitel 2 beschriebene Theorie bei hohen Intensitäten versagt, daß die vorgetragenen Argumente aber nicht überzeugen. Gegenwärtig ist es auch nicht möglich, eine befriedigende Erklärung der "verbotenen" Konversion bei $\Delta k > 0$ vorzubringen.

Aus den Experimenten mit negativer Dispersion läßt sich ein Wert für die nichtlinearen Suszeptibilitäten von Xenon ableiten, wenn man den Proportionalitätsfaktor in den Gleichungen (48) und (49) an die Meßpunkte anpaßt. Wegen experimenteller Fehlerquellen wie Strahlqualität, Konkurrenzprozessen usw., erhält man nur ungefähre Werte. Deshalb kann nur die Größenordnung der betreffenden nichtlinearen Suszeptibilität angegeben werden.

Für die Suszeptibilität dritter Ordnung ergibt sich bei einer Pumpstrahlung von 438 nm

$$\chi^{(3)}(-9\omega; 3\omega, 3\omega, 3\omega) = 2.6 \cdot 10^{-34} \text{ esu pro Atom}$$

und für die Suszeptibilität neunter Ordnung bei einer Pumpstrahlung von 1,3152 μm

$$\chi^{(9)}(-9\omega; \omega, \omega, \omega, \omega, \omega, \omega, \omega, \omega, \omega) = 2.5 \cdot 10^{-63} \text{ esu pro Atom}$$

Bei der Berechnung des letzten Wertes wurde angenommen, daß keine Stufenprozesse, wie z.B.

$$\omega + \omega + \omega \rightarrow 3\omega \quad ; \quad 3 \times 3\omega \rightarrow 9\omega \quad ,$$

stattfinden /64-66/.

Die oben angegebenen Werte lassen sich zwar nicht direkt mit Literaturwerten vergleichen, doch findet man bei Zych and Young /67/ einen Wert von $\chi^{(3)}$ für Xenon bei 354,7 nm Pumpstrahlung

$$\chi^{(3)}(-3\omega; \omega, \omega, \omega) = 2,3 \cdot 10^{-35} \text{ esu pro Atom,}$$

also etwa einen Faktor 10 kleiner als der Wert, der aus den vorliegenden Messungen berechnet worden war. Dieser Umstand läßt sich aus der Lage der Resonanzniveaus in Xenon erklären. Bei 354,7 nm Pumplicht ergibt sich eine 3ω -Resonanz mit $5d[3/2]^\circ$, wobei der Frequenzabstand 709 Wellenzahlen beträgt, bei 438 nm Pumplicht liegt eine 3ω -Resonanz mit $6s[3/2]^\circ$ vor, während sich der Frequenzabstand auf 384 Wellenzahlen beläuft.

Andere, in der Literatur für Xenon angegebene Daten lassen sich mit dem hier erhaltenen Wert nicht vergleichen, da die Wechselwirkung bei wesentlich längeren Wellenlängen erfolgte (weit unterhalb der ersten Resonanzniveaus) /68-71/.

Für die Suszeptibilität neunter Ordnung von Xenon ist kein Wert bekannt. Es gibt in der Literatur nur eine einzige Messung, und zwar für Natrium mit 1,06 μm Pumpstrahlung /72/

$$\chi^{(9)}(-9\omega; \omega, \omega, \omega, \omega, \omega, \omega, \omega, \omega, \omega) = 10^{-64} \text{ esu pro Atom.}$$

Hier ist anzumerken, daß die Wechselwirkung im Ionisationskontinuum erfolgte und somit jede Spekulation hinsichtlich der Übereinstimmung oder Abweichung vom Wert für Xenon wenig sinnvoll ist.

5. Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurde gezeigt, daß Jodlaserpulse durch nichtlineare Wechselwirkung in Edelgasen in kohärente Strahlung im VUV- und XUV-Bereich konvertiert werden können. Bei der Erzeugung von 9 ω -Licht (146 nm) aus der dritten Harmonischen des Jodlasers (bei 438 nm) wurde in Xenon eine Konversion von $2 \cdot 10^{-5}$ erzielt und bei 60 MW Eingangsleistung eine VUV-Leistung von etwa 1 kW erreicht. Für die fünfte Harmonische derselben Pumpleistung ergab sich ein Wirkungsgrad von $8 \cdot 10^{-9}$ und eine XUV-Leistung von etwa 1 Watt. Die direkte Umwandlung von Jodlaserlicht in das VUV-Gebiet lieferte wesentlich kleinere Wirkungsgrade und nur noch im mWatt-Bereich liegende Leistungen.

Für eine mögliche Anwendung der Experimente dieser Arbeit ist es von entscheidender Bedeutung, ob der Umwandlungsgrad durch geeignete Maßnahmen erhöht werden kann.

Aus den vorliegenden Resultaten ergibt sich, daß der Wirkungsgrad der Experimente durch den optischen (quadratischen) Kerreffekt, der den Brechungsindex der Harmonischen in Gegenwart hoher Pumpintensität ändert, begrenzt ist. Eine wesentliche Steigerung des Wirkungsgrades sollte deshalb durch schwächeres Fokussieren erreichbar sein. Bei den durchgeführten Experimenten war eine geringere Fokussierung wegen der Geometrie des Spektrometers nicht möglich, da die opti-

sche Zerstörungsschwelle der Fenster und vor allem des Gitters überschritten worden wäre.

Bei schwächerem Fokussieren könnte auch der Druck oder die Pumpenergie, die durch dielektrischen Durchbruch im Fokus begrenzt ist, erheblich angehoben werden, wodurch sich bei günstigen Voraussetzungen ein weiterer Anstieg der Konversion ergäbe. Unter Umständen verlief dann auch eine Suche nach noch kürzeren Wellenlängen erfolgreich.

Weil bei Annäherung an das Ionisationskontinuum immer mehr Niveaus auftreten, die zu resonanter Überhöhung der nicht-linearen Suszeptibilität führen, verspricht eine Fortsetzung der Experimente in dieser Richtung interessante Ergebnisse, um so mehr, als Frequenzvervielfachung selbst über der Ionisationsgrenze beobachtet werden konnte /73, 74/, wenn Resonanzniveaus aufgrund autoionisierender Zustände vorhanden waren.

Eine weitere Möglichkeit, in den VUV- und XUV-Bereich vorzudringen, besteht darin, die vierte, fünfte oder sechste Harmonische des Jodlasers /35, 36/ als Pumpstrahlung einzusetzen. In Tabelle 3 ist ein Schema erreichbarer Wellenlängen zusammengestellt.

Tabelle 3

Höhere Harmonische des Jodlasers

Fundamental - Harmonische	438 nm	329 nm	263 nm	219 nm
3. Harmonische	146 nm	110 nm	88 nm	73 nm
5. Harmonische	88 nm	66 nm	53 nm	44 nm
7. Harmonische	63 nm	47 nm	38 nm	31 nm

Die durch Frequenzkonversion von Jodlaserlicht erzeugten VUV- und XUV-Pulse sind wegen der feststehenden Pumpwellenlängen nicht abstimmbar und daher für spektroskopische Untersuchungen kaum zu verwenden. Es ergibt sich aber eine interessante Anwendung in der Diagnostik lasererzeugter Plasmen. Da die kritische Dichte eines Plasmas mit ω^2 ansteigt, könnte durch kurzwellige Pulse ein Plasma bei wesentlich höherer als der kritischen Dichte des Hauptlasers "durchleuchtet" werden. Wird zudem der Probenpuls durch Frequenzkonversion eines kleinen Teils des Hauptlaserpulses erzeugt, so stünde ein exakt zeitsynchronisierter "Sondenpuls" zur Verfügung. Experimente dieser Art wurden am MPQ bereits durchgeführt, wobei allerdings die Wellenlänge des Sondenpulses noch im Sichtbaren lag und die Zeitsynchronisation auf wesentlich kompliziertere Art herbeigeführt wurde /75/.

Legende der wichtigsten Symbole

b	=	konfokaler Parameter
c	=	Lichtgeschwindigkeit im Vakuum
F_m	=	Phasenintegral m-ter Ordnung
k_m	=	Wellenvektor der m-ten Harmonischen
Δk	=	$k_m - mk_1$ = Wellenvektordifferenz
L	=	Länge des nichtlinearen Mediums
m	=	Ordnung der nichtlinearen Wechselwirkung
n_m	=	Brechungsindex bei der Wellenlänge der m-ten Harmonischen
N	=	Dichte
P_m	=	Leistung der m-ten Harmonischen
w_0	=	Radius der Strahltaille
z	=	Koordinate in Strahlausbreitungsrichtung
λ	=	Wellenlänge
$\chi^{(m)}$	=	nichtlineare Suszeptibilität m-ter Ordnung
ω	=	Kreisfrequenz

Anhang 1

Düsen-Theorie:

Im folgenden soll die Entspannung eines ruhenden Gasvolumens in ein Hochvakuum betrachtet werden.

Erfolgt die Expansion über ein Ventil mit sehr kleiner Öffnung, so bildet sich ein freier Gasstrahl aus, der sich mit Überschall ausbreitet. Formeln für die Dichte, Temperatur und Druck des supersonischen Gasjets sollen angegeben werden, wobei vorausgesetzt wird, daß im Düsenstrahl keine Polymerbildung (Clusterbildung) stattfindet. Unter geeigneten Bedingungen, d.h. wenn weder Viskositätskräfte wirksam sind noch Wärmeleitung stattfindet, keine Wärmequellen vorhanden sind und keine chemischen Reaktionen auftreten, spricht man von einer isentropen oder adiabatisch reversiblen Expansion.

Unter isentropen Bedingungen werden

der Druck p ,

die Temperatur T ,

die Dichte n und

die Machzahl M

durch die Beziehungen der Thermodynamik bestimmt.

Für ein ideales Gas erhält man aus den Isentropiegleichungen folgende Relationen:

Für den Druck des Düsenstrahls im Entspannungsvolumen

$$p(x) = p_0 \left(1 + \frac{\gamma-1}{2} M^2(x) \right)^{-\frac{\gamma}{\gamma-1}}, \quad (A1)$$

für die Dichte des Gasstrahles

$$n(x) = n_0 \left(1 + \frac{\gamma-1}{2} M^2(x) \right)^{-\frac{1}{\gamma-1}} \quad (A2)$$

und für die Temperatur

$$T(x) = T_0 \left(1 + \frac{\gamma-1}{2} M^2(x) \right)^{-1} \quad (A3)$$

Dabei bezeichnen $p(x)$, $n(x)$, $T(x)$ Druck, Dichte und Temperatur des Gases im Abstand x von der Düsenöffnung.

$M(x)$ ist die Machzahl in der Entfernung x von der Düse.

Die Machzahl ist als das Verhältnis der Strömungsgeschwindigkeit zur zugehörigen Schallgeschwindigkeit definiert.

Vergleicht man die Beziehungen für Druck, Dichte und Temperatur, so läßt sich folgender Zusammenhang zwischen den charakteristischen Größen eines sich isentrop entspannenden Überschallstrahls ableiten:

$$\frac{T}{T_0} = \left(\frac{p}{p_0} \right)^{\frac{\gamma-1}{\gamma}} = \left(\frac{n}{n_0} \right)^{\gamma-1} = \left(1 + \frac{\gamma-1}{2} M^2 \right)^{-1} \quad (A4)$$

$\gamma = c_p/c_v$ stellt das Verhältnis der spezifischen Wärmekoeffizienten bei konstantem Druck und konstantem Volumen dar. Im Fall monoatomarer Gase, z.B. Edelgasen, nimmt γ den Wert 5/3 an.

Askenas und Sherman /76/ gaben in ihrer Formel an, wie sich die Machzahl entlang der Strahlachse mit dem Abstand x von der Düsenöffnung ändert:

$$M(x) = A \left(\frac{x}{D} - \frac{x_0}{D} \right)^{\gamma-1} - \frac{1}{2A} \left(\frac{\gamma+1}{\gamma-1} \right) \left(\frac{x}{D} - \frac{x_0}{D} \right)^{1-\gamma} \quad (A5)$$

Es bezeichnet:

- D den Düsendurchmesser,
 γ das Verhältnis der spezifischen Wärmekoeffizienten bei konstantem Druck bzw. Volumen,
 x den Abstand von der Düsenöffnung und
 $\frac{x_0}{D}$ und A 2 Konstanten, die Askenas und Sherman mit 0,075 bzw. 3,26 bestimmen.

Setzt man diese Werte in die Formel

$$M(x) = 3,26 \left(x/D - 0,075 \right)^{2/3} - 0,61 \left(x/D - 0,075 \right)^{-2/3} \quad (A6)$$

ein, so errechnet sich für einen Düsendurchmesser D von 0,5 mm in 1 mm Abstand - unabhängig vom Hintergrunddruck - etwa fünffache Schallgeschwindigkeit.

Da die Kondensation wesentlich langsamer als die Rotations- oder Vibrationsrelaxationen einsetzt, kann das Gas sehr tiefe Temperaturen erreichen, bevor Kondensation auftritt.

In unserem speziellen Fall sinkt die Temperatur im Gasstrahl auf 32 Kelvin ab.

Die Messungen wurden bei verschiedenen, etwa zwischen 1 bar und 20 bar gelegenen Reservoirdrücken durchgeführt, wobei der Gasdruck in 1 mm Entfernung von der Düsenaustrittsöffnung zwischen 5,2 hPa und 104 hPa variierte.

Anhang 2:

Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilität $\chi^{(m)}$:

Der Brechungsindex wurde nach folgender Sellmeier-Gleichung /58/ berechnet: (λ in μm).

$$\text{Xe: } n_0(1\text{bar}) - 1 = 1,2055 \cdot 10^{-2}$$

$$\left(\frac{0,26\,783}{46,301 - \lambda^{-2}} + \frac{0,29\,481}{50,578 - \lambda^{-2}} + \frac{5,0333}{112,74 - \lambda^{-2}} \right)$$

1. Nichtlineare Suszeptibilität dritter Ordnung

$\chi^{(3)}(-9\omega; 3\omega, 3\omega, 3\omega)$ in Xenon (10 hPa)

$$\lambda_{3\omega} = 0,4384 \mu\text{m} \quad n - 1 = 7,21 \cdot 10^{-6}$$

$$\lambda_{9\omega} = 0,1461 \mu\text{m} \quad n - 1 = 4,02 \cdot 10^{-5}$$

$$\Delta k_3 = -180,4 \text{ [1/cm]} = -1,804 \cdot 10^4 \text{ [1/m]}$$

$$b = 42 \text{ [\mu m]} = 4,2 \cdot 10^{-3} \text{ [cm]}$$

$$b\Delta k_3 = -0,7659 \text{ [-]}$$

$$c = 3 \cdot 10^{10} \text{ [cm/s]} = 3 \cdot 10^8 \text{ [m/s]}$$

$$N = 2,4 \cdot 10^{17} \text{ [1/cm}^3\text{]} = 2,4 \cdot 10^{23} \text{ [1/m}^3\text{]}$$

$$|F_3| = 1,579 \text{ [-]}$$

$$P_1 = 49,33 \text{ [MW]} = 4,933 \cdot 10^{14} \text{ [erg/s]}$$

$$P_{9\omega}/P_{3\omega} = 10^{-5}$$

Aus Formel (34) folgt:

$$|\chi^{(3)}|^2 = \frac{P_{9\omega}}{P_{3\omega}} \cdot \frac{1}{(P_{1\omega})^2} \cdot \frac{\lambda_{3\omega}^4 \cdot n_{3\omega} \cdot n_{9\omega} \cdot C^2}{2^8 \pi^6} \cdot \frac{1}{|F_3|^2}$$

$$|\chi^{(3)}|^2 = 4,9 \cdot 10^{-33}$$

$$\chi^{(3)} = 6,99 \cdot 10^{-17} \text{ [esu] bei 10 mb}$$

$$= 2,6 \cdot 10^{-34} \text{ [esu/Atom] *}$$

2. Nichtlineare Suszeptibilität neunter Ordnung

$\chi^{(9)}$ $(-9\omega; \omega, \omega, \omega, \omega, \omega, \omega, \omega, \omega, \omega)$ in Xenon (40 hPa)

$$\lambda_{1\omega} = 1315,2 \text{ nm} \quad n-1 = 2,732 \cdot 10^{-5}$$

$$\lambda_{9\omega} = 146,1 \text{ nm} \quad n-1 = 1,616 \cdot 10^{-4}$$

$$\Delta k_9 = -1,2 \cdot 10^2 \text{ [1/cm]} = -1,2 \cdot 10^4 \text{ [1/m]}$$

$$b = 4,245 \cdot 10^{-3} \text{ [cm]} = 42,45 \text{ [}\mu\text{m]}$$

$$b\Delta k_9 = -0,5018 \text{ [-]}$$

$$c = 3 \cdot 10^8 \text{ [m/s]} = 3 \cdot 10^{10} \text{ [cm/s]}$$

$$N = 1,076 \cdot 10^{24} \text{ [1/m}^3\text{]} = 1,076 \cdot 10^{18} \text{ [1/cm}^3\text{]}$$

$$|F_9| = 1,1717 \cdot 10^{-15} \text{ [-]}$$

$$P_1 = 52 \text{ [MW]} = 5,2 \cdot 10^{14} \text{ [erg/s]}$$

$$P_{9\omega}/P_{1\omega} = 4 \cdot 10^{-11}$$

$$|\chi^{(9)}|^2 = \frac{P_{9\omega}}{P_{1\omega}} \cdot \frac{1}{(P_{1\omega})^8} \cdot \frac{n_{1\omega} \cdot n_{9\omega} \cdot \lambda_1^4 \cdot c^8}{2^{14} \pi^{12}} \left(\frac{b \lambda_1}{4}\right)^6 \cdot \frac{1}{|F_9|^2}$$

$$\chi^{(9)} = 6,2 \cdot 10^{-90} \text{ [esu]}$$

$$\chi^{(9)} = 2,5 \cdot 10^{-63} \text{ [esu/Atom] } *$$

* Da auch in neuer Literatur die nichtlinearen Suszeptibilitäten meistens in esu-Einheiten angegeben werden, fanden diese anstelle von SI-Größen auch hier Verwendung. Umrechnung von cgs - in SI-Einheiten:

$$\chi^{(m)} \text{ (SI)} / \chi^{(m)} \text{ (esu)} = 4\pi/10^6 (10^{-4} \text{ c})^{m-1}$$

Literaturverzeichnis

- /1/ P. Franken, A.E. Hill, C.W. Peters, G. Weinreich:
Phys.Rev. Lett. 7 (1961) 118
- /2/ N. Bloembergen: Nonlinear Optics 1965
F. Zernicke und J.E. Midwinter: Applied Nonlinear,
Optics, 1973
- /3/ H.F. Döbele, M. Röwekamp und B. Rückle,
IEEE Journal Quantum Electron. QE-20 (1984) 1284
- /4/ G.H.C. New und J.F. Ward: Phys.Rev.Lett. 19 (1967) 556
- /5/ G.H.C. New und J.F. Ward: Phys.Rev. 185 (1969) 57
- /6/ W.G. Rado: Phys.Rev.Lett. 11 (1976) 123
- /7/ S.E. Harris und R.B. Miles: Appl.Phys.Lett. 19 (1971) 385
- /8/ J.F. Young, G.C. Bjorklund, A.H. Kung, R.B. Miles
und S.E. Harris: Phys.Rev.Lett. 27 (1971) 1551
- /9/ R.B. Miles und S.E. Harris: IEEE Journal Quant.
Electron. QE - 9 (1973) 470
- /10/ D.M. Bloom, J.T. Yardley, J.F. Young, S.E. Harris:
Appl.Phys.Lett. 24 (1974) 427
- /11/ R.T. Hodgson, P.P. Sorokin und J.J. Wynne:
Phys.Rev.Lett. 32 (1974) 343
- /12/ K.M. Leung, J.F. Ward und B.J. Orr:
Phys.Rev. A 9 (1974) 2440
- /13/ H. Scheingraber, C.R. Vidal:
IEEE Journal Quant.Electron. QE-19 (1983) 1747
- /14/ H. Hilbig und R. Wallenstein: Appl. Optics 21 (1982) 913
- /15/ H.H. Freeman, G.C. Bjorklund, N.P. Economou,
P.F. Liao, C.F. Bjorkholm: Appl.Phys.Lett.33 (1978) 739
- A. Timmerman und C.R. Wallenstein:
Opt. Lett. 8 (1983) 517

- /16/ H. Pummer, H. Egger und C.K. Rhodes: Proceedings
of the First International Congress on Applications
of Lasers and Electro-Optics
J. Reintjes, C.Y. Shee, R.C. Eckhard, N.E. Karangelen,
R.A. Andrews und R.C. Elton:
Appl.Phys.Lett. 30 (1977) 480
J. Bokor, P.H. Buchsbaum und R.R. Freeman:
Opt.Lett. 8 (1983) 217
- /17/ M.D. Rosen, P.L. Hagelstein, D.L. Mathews, E.M. Campell,
A.U. Hazi, B.L. Whitten, B. MacGowan, R.E. Turner,
R.W. Lee, G. Charatis, E. Busch, C.L. Shepard und
P.D. Rockett: Phys.Rev.Lett. 54 (1985) 106,110
- /18/ P.N. Butcher: Nonlinear Optical Phenomena, 1965
- /19/ N. Bloembergen: Nonlinear Optics, 1965
- /20/ D.C. Hanna, M.A. Yuratich und D. Cotter:
Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules, 1979
- /21/ W. Jamorz und B.P. Stoicheff in: Progress in Optics XX,
1983, p. 325; ed.: E. Wolf
- /22/ J. Reintjes: Nonlinear Optical Parametric Processes
in Liquids and Gases, 1984
- /23/ C.R. Vidal: "Four Wave Frequency Mixing in Gases"
in Topics in Applied Physics, ed.: I.F. Mollenauer
und J.C. White, Springer Verlag 1984
- /24/ Y.R. Shen: The Principles of Nonlinear Optics, 1984
- /25/ D.C. Hanna, M.A. Yuratich und D. Cotter:
Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules, 1979
- /26/ P.N. Butcher: Nonlinear Optical Phenomena, 1965
- /27/ D.C. Hanna, J. Reintjes, C.Y. She und R.C. Eckhardt:
IEEE Journal Quantum Electron. QE-14 (1978) 581
- /28/ H. Vanherzeele: Rev.H.F. Tijdschrift 8 (1972) 261
- /29/ Y.M. Yiu, T.J. McIlrath und R. Mahon:
Phys.Rev. A 20 (1979) 2470

- /30/ G.C. Bjorklund: IEEE Journal Quantum Electron.
QE-11 (1975) 287
- /31/ J.F. Ward und G.H.C. New: Phys.Rev. 185 (1969) 57
- /32/ J. Reintjes, C.Y. She, R.C. Eckhardt:
IEEE Journal Quantum Electron. QE-14 (1978) 581
- /33/ E.E. Fill in: Developments in High-Power Lasers
and their Applications, 1981, Soc.Italiana di Fisica
- /34/ G. Brederlow, E. Fill, J.K. Witte: The High-Power
Iodine Laser, 1981, Springer-Verlag
- /35/ E.E. Fill: Opt. Comm. 33 (1980) 321
- /36/ E.E. Fill und J. Wildenauer: Opt.Comm. 47 (1983) 412
- /37/ R.S. Craxton: Opt.Comm. 34 (1980) 474
- /38/ R.S. Craxton: IEEE Journal Quantum Electron.
QE-17 (1981) 1771
- /39/ J. Reintjes, J.R.C. Eckhardt, Y.C. She, N.E. Karangelen,
R.C. Elton und R.A. Andrews:
Phys.Rev.Lett. 37 (1976) 1540
Appl. Phys. Lett. 30 (1977) 480
- J. Reintjes, C.Y. She und R.C. Eckhardt:
IEEE Journal Quantum Electron. QE-14 (1978) 581
- J. Reintjes, M. Dlabal und L.L. Tankersley in:
Laser Techniques for EUV Spectroscopy, 1982,
eds.: R.R. Freeman und T.J. McIlrath
- J. Reintjes, L.L. Tankersley und R. Christensen:
Opt. Comm. 39 (1981) 334
- /40/ H. Egger, R.T. Hawkins, J. Bokor, H. Pummer,
M. Rothschild und C.K. Rhodes, Opt.Lett. 5 (1980) 272
- H. Egger, T. Srinivasan, K. Boyer, H. Pummer und
C.K. Rhodes, 1982, Generation of Tunable, Coherent
79 nm Radiation by Frequency Mixing, in: Proc.
Laser Techniques for Extreme Ultraviolet Spectro-

scopy, Boulder, Colorado, 1982, eds. R.R. Freeman und T. J. McIlrath (American Institute of Physics, New York)

- T. Srinivasan, H. Egger, H. Pummer und C.K. Rhodes:
IEEE Journal Quantum Electron, QE-19 (1983) 1270
- /41/ R. Hilbig und R. Wallenstein: IEEE Journal Quantum
Electron. QE-17 (1981) 1566
- R. Hilbig und R. Wallenstein: Opt.Comm. 44 (1983) 283
- R. Hilbig und R. Wallenstein: Opt.Comm. 49 (1984) 297
- /42/ V.V. Slabko, A.K. Popov und V.F. Lukinykh:
Appl.Phys. 15 (1977) 239
- B.I. Throshin, V.P. Chebotaev und A.A. Cherenko:
JETP Lett. 27 (1978) 273
- L. Hellner und J. Lukasik: Opt.Comm. 51 (1984) 347
- /43/ J. Bokor, P.H. Buchsbaum und R.R. Freeman:
Opt. Lett. 8 (1983) 265
- /44/ C.T. Rettner, E.E. Marinero, R.N. Zare und A.H. Kung
in: Proceedings of the Society of Photo-Optical
Instrumentation, 1984
- /45/ A.H. Kung, C.T. Rettner, E.E. Marinero und R.N. Zare:
Proc. of the Topical Meeting on Laser-Techniques
in the EUV, 1984
- /46/ C.T. Rettner, E.E. Marinero, A.H. Kung:
AIP Conf. Proc. of the Topical Meetings on
Optical Techniques for Remote Probing of the
Atmosphere, Excimer Lasers, Signal Recovery and
Synthesis, Meteorological Optics and Optical
Data Storage, 1983, p. 345
- /47/ A.H. Kung: Proc. of the Conference on Lasers and
Electro-Optics, 1983, p. 50
- /48/ C.E. Otis und P.M. Johnson: Rev.Sci.Instrum. 51
(1980) 1128

- /49/ M. Kühne: private Mitteilung
- /50/ W.L. Wiese und G.A. Martin: Wavelength and
Transition Probabilities for Atoms and Atomic
Ions, 1980
- /51/ A.R. Striganov und N.S. Sventitskii: Tables of
Spectral Lines of Neutral and Ionized Atoms, 1968
- /52/ Ch.E. Moore: Atomic Energy Levels, Vol. III, 1958
- /53/ Ch.E. Moore: Atomic Energy Levels, Vol. I , 1958
- /54/ S. Bashkin und O. Stoner: Atomic Energy-Level and
Grotrian Diagrams, Vol. I-III, 1970
- /55/ M.L. Dlabal, J. Reintjes und L.L. Tankersley:
2nd Topical Meeting on Laser Techniques in the
EUV, 1984
- /56/ R. Mahon und F.S. Tomkins: IEEE Journal Quantum
Electron. QE-18 (1982) 913
- /57/ D.C. Hanna, M.A. Yuratich und D. Cotter:
Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules,
1979, Sect. 2.6
- L.J. Zych und J.F. Young: IEEE Journal Quantum
Electron. QE-14 (1978) 147
- H. Puell und C.R. Vidal: Phys.Rev. A 14 (1976) 2225
- H. Puell, K. Spanner, W. Falkenstein, W. Kaiser
und C.R. Vidal: Phys.Rev. A 14 (1976) 2240
- D. Grischkowsky: Phys.Rev. Lett. 24 (1970) 866
- /58/ A. Bideau-Mehu, Y. Guern, R. Abjean und
A. Johannin-Gilles: J.Quant.Spectrosc.Radiat.
Transfer 25 (1981) 395
- /59/ R.L. Carman, C.K. Rhodes und R.F. Benjamin:
Phys.Rev. A 24 (1981) 2649

- /60/ N.H. Burnett, H.A. Baldis, M.C. Richardson
und G.D. Enright: Appl.Phys.Lett. 31 (1977) 172
- /61/ J.K. Witte und J.R.G. Krug: MPQ-Report 61
- /62/ R. Mahon und F.S. Tomkins: IEEE Journal Quantum
Electron. QE-18 (1982) 913
- /63/ J. Reintjes, M. Dlabal und L.L. Tankersley in:
Laser Techniques for EUV Spectroscopy, eds:
R.R. Freeman und T.J. McIllrath, 1982, p. 491
- /64/ V.G. Tunkin, T. Usmanov und V.A. Slakirov:
Sov.J.Quantum Electron. 2 (1973) 487
- /65/ I.V. Tomov und M.C. Richardson: IEEE Journal Quantum
Electron. QE-12 (1976) 521
- /66/ J. Reintjes, C.Y. She und R.C. Eckhardt:
IEEE Journal Quantum Electron. QE-14 (1978) 581
- /67/ L.J. Zych und J.F. Young: IEEE Journal Quantum
Electron. QE-14 (1978) 147
- /68/ E.L. Dawes: Phys.Rev. 169 (1968) 47
- /69/ J.F. Ward und G.H.C. New: Phys.Rev. 185 (1969) 57
- /70/ C.C. Wang: Phys.Rev. B 2 (1970) 2045
- /71/ H.J. Lehmeier, W. Leupacher und A. Penzkofer:
Opt.Comm. 56 (1985) 67
- /72/ M.G. Grozeva, D.I. Metchkov, V.M. Mitev, L.I. Pavlov
und K.V. Stamenov: Opt.Comm. 23 (1977) 77
- /73/ P.P. Sorokin, J.J. Wynne, J.A. Amstrong und
R.T. Hodgson: Ann.N.Y.Acad.Sci. 207 (1976) 30
- /74/ J. Reintjes, C.Y. She, R.C. Eckhardt, N.E. Karangelen,
R.A. Andrews und R.C. Elton: Appl.Phys.Lett. 30
(1977) 480
- /75/ R. Sigel, A.G.M. Maaswinkel, G.D. Tsakiris:
Proc. of the 16th Intern. Congress on High Speed
Photography and Photonics, 1984
- /76/ H. Ashkenas und F.S. Sherman in: Rarefied Gas Dynamiics,
Vol. 2, 1964, ed.: J.A. Laurman

Danksagung

Ich danke allen, die mich bei der Durchführung der Arbeit unterstützt haben.

Mein besonderer Dank aber gilt Herrn Professor Dr. Walther für die Förderung dieser Arbeit und die Möglichkeit, sie am MPQ auszuführen.

Ferner habe ich zu danken

Herrn Dr. Witkowski für großzügige Unterstützung, die er mir in seiner Abteilung zukommen ließ, und

Herrn Dr. Brederlow für viele Hinweise und tatkräftige Förderung.

Meinem Betreuer, Herrn Dr. Fill, fühle ich mich für zahlreiche höchst förderliche, von profunder Sachkenntnis getragene Diskussionen, Ratschläge und für sonstige wertvolle Unterstützung zu außerordentlichem Dank verpflichtet.

Darüber hinaus danke ich Herrn Priv.-Doz. Dr. Witte und Herrn Dr. Volk für manche Anregungen und Hinweise.

Auch dem technischen Personal sei für geleistete Dienste gedankt.

Persönliche Daten

Geboren:	28.10.1952 in München
Volksschule:	4 Jahre in München
Humanistisches Gymnasium:	9 Jahre in München
Studium der Physik:	Ludwig-Maximilians-Universität München (Diplom)
Zusatzstudium Medizin:	Ludwig-Maximilians-Universität München (5 Semester)
Anfertigung der Promotion:	Max-Planck-Institut für Quantenoptik

